

Strahlenschaden von
25 MeV-Sauerstoffionen in Al⁵⁷ Co:

Aufnahme einer Dosiskurve
mit Mössbauereffekt- und
Widerstandsmessungen

von

Norbert Zeman
aus Nürnberg

Diss. Erlangen
1984

1984 № 104



Strahlenschaden von
25 MeV-Sauerstoffionen in Al⁵⁷ Co:

Aufnahme einer Dosiskurve
mit Mössbauereffekt- und
Widerstandsmessungen

Den Naturwissenschaftlichen Fakultäten
der Friedrich-Alexander-Universität Erlangen - Nürnberg

zur

Erlangung des Doktorgrades

vorgelegt von
Norbert Zeman
aus Nürnberg

Als Dissertation genehmigt von den Naturwissenschaft-
lichen Fakultäten der Universität Erlangen-Nürnberg

Tag der mündlichen Prüfung:

13. Februar 1984

Vorsitzender der Promotionskommission: Professor Dr. K. Jacobs

Erstberichterstatte: Professor Dr. H. Wegener

Zweitberichterstatte: Priv.-Doz. Dr. W. Witthuhn

Inhalt

	Seite
I Einleitung	7
II Experimenteller Teil	10
A Herstellung von Al^{57}Co -Quellen	10
B Rückstreuemessungen an inaktiven AlCo -Proben	12
C Die Bestrahlungs- und Meßapparatur	14
D Bestrahlungen, Widerstands- und Mössbaueremessungen	25
III Der Strahlenschaden	28
A Abschätzung anhand des Kinchin-Pease-Modells	30
B Berechnung unter realistischeren Annahmen	32
IV Ergebnisse und Diskussion	37
A Widerstands- und Mössbaueremessungen vor Bestrahlung	37
B Analyse der Rückstreuemessungen	41
C Widerstands- und Mössbaueremessungen nach Bestrahlung	43
D Dosisabhängigkeit des Defektanteils F im Mössbauerspektrum	56
V Zusammenfassung	67
VI Literaturverzeichnis	69

Abstract

Eine mit 1,3atom-ppm ⁵⁷Co dotierte Al-Folie wurde bei 100K mit O^{4+} -Ionen einer Energie von 25MeV bestrahlt. In Abhängigkeit von der Dosis wurden bei 4,2K Widerstands- und Mössbauermessungen durchgeführt. Im Mössbauerspektrum weist das Erscheinen einer "Defektlinie" auf den Einfang von diffundierenden Zwischengitteratomen (ZGAen) durch ⁵⁷Co-Atome hin. Während der Probenwiderstand sättigungs-ähnliches Verhalten zeigt, durchläuft der Anteil der ⁵⁷Co-Atome, die ZGAe eingefangen haben, ein Maximum, um mit weiter steigender Dosis wieder zu sinken. Dieses Verhalten wird erklärt durch bestrahlungsinduziertes Ausheilen vor allem von eingefangenen Einzel-ZGAen und kleinen ZGA-Clustern, während große ZGA-Cluster der Ausheilung entgehen.



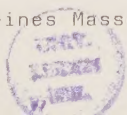
Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41546214_0080

I Einleitung

Seit Mansel, Vogl und Koch /1/ 1973 mit Hilfe des Mössbauereffektes zum erstenmal an einer bei tiefen Temperaturen mit Neutronen bestrahlten ^{57}Al Co-Probe zeigen konnten, daß die Co-Fremdatome Zwischengitteratome (ZGAe) einfangen, fand das System $^{57}\text{AlCo}$ lebhaftes Interesse. Kurz danach wurde eine Untersuchung des Vibrationsverhaltens von Co-ZGA-Komplexen /2/ und eine Messung mit in Al rückstoßimplantiertem Coulomb-angeregtem ^{57}Fe /3,4/ veröffentlicht. 1976 folgte Elektronenbestrahlung oberhalb der Ausheilstufe I und die Entdeckung, daß Co-Atome, die genau ein ZGA eingefangen haben, thermisch aktivierte "Käfigsprünge" innerhalb eines eng begrenzten räumlichen Bereichs ausführen /5/. In der Zeit danach wurden diese Ergebnisse präzisiert /6,7/ und auf das System $^{57}\text{AgCo}$ ausgedehnt /8/. Nach einem ersten Hinweis auf eine mögliche Bindung zwischen Co-Fremdatomen und Leerstellen (LSn) in Al /9/ wurden 1977 einige Messungen auf diesem Gebiet veröffentlicht /10,11/. 1981 tauchte die bisher nicht endgültig bewiesene Vermutung auf, daß die Co-Atome LSn auch einfangen können /12/. Ungefähr um die gleiche Zeit gelang es W. Petry /13-16/, durch Mössbauerspektroskopie an einem mit ^{57}Co dotierten und mit Elektronen bestrahlten Al-Einkristall die Geometrie des oben erwähnten "Käfigs" zu bestimmen: er fand, daß ein ^{57}Co - bzw. ^{57}Fe -Atom (s.u.), das genau ein ZGA eingefangen hat, innerhalb der 8 Ecken eines Würfels in der Al-Elementarzelle springt.

Bei allen diesen Messungen (bis auf die Versuche, bei denen LSn durch Abschrecken erzeugt wurden) wurden ^{57}Al Co-Proben entweder mit Neutronen oder mit Elektronen bestrahlt. Erst vergleichsweise spät, nämlich 1982, wurde eine gründliche Untersuchung mit Schwerionenbestrahlung veröffentlicht /17/; die verwendete Probe wurde durch Implantation von ^{57}Co in eine Al-Folie mit Hilfe eines Massenseparators hergestellt.



Schwerionen bilden bezüglich des Strahlenschadens, den sie erzeugen, ein Bindeglied zwischen Elektronen und Neutronen. Elektronen können aufgrund ihrer kleinen Masse nur wenig Energie auf die Targetatome übertragen und erzeugen deshalb im wesentlichen isolierte Frenkeldefekte, während Neutronen wegen ihrer vergleichsweise großen Masse und vor allem wegen ihrer unmittelbaren Wechselwirkung mit dem Kern eines Targetatoms (zentraler Stoß) viel Energie übertragen und deshalb im Target ausgedehnte Defektkaskaden produzieren.

Dagegen gilt für die Wechselwirkung von Schwerionen mit Targetkernen angenähert der Rutherford-Wirkungsquerschnitt, der kleine Energieüberträge bevorzugt, so daß Schwerionen einerseits viele isolierte Frenkeldefekte erzeugen; andererseits wird bei genügend zentralem Stoß wegen der großen Masse sehr viel Energie auf ein Targetatom übertragen, so daß vereinzelte Schwerionen auch große Defektkaskaden erzeugen können. Ziel dieser Arbeit ist es, nachzuprüfen, wieweit einige Ergebnisse der Elektronen- bzw. Neutronenbestrahlung von ^{57}Co auf Schwerionenbestrahlung übertragbar sind. Naturgemäß kann dieses Ziel im Rahmen einer Dissertation nur bruchstückhaft erreicht werden. Deshalb wurde die Untersuchung auf nur eine Projektilsorte und eine Bestrahlungstemperatur beschränkt. Als Targetmaterial wurde außer Aluminium auch Kupfer untersucht. Bei Kupfer lieferten die Mössbauerspektren keinerlei Hinweise auf Defekteinfang; offensichtlich werden in diesem Material weder ZGAs noch LSn von Kobalt-Fremdatomen eingefangen.

In dieser Arbeit wurde ein durch Schmelzdifusion mit ^{57}Co dotiertes Al-Target bei 100K in mehreren Schritten mit steigender Dosis bestrahlt. Als Projektile wurden Sauerstoffionen mit 25MeV Energie verwendet. Nach jeder Bestrahlung wurde ein Mössbauerspektrum aufgenommen und der Probenwiderstand gemessen.

Die Kombination von Widerstandsmessung als makroskopischer Methode und Mössbauerspektroskopie als Sondenmethode hat

große Vorteile. Der Probenwiderstand ist ein Maß für die mittlere Konzentration von Streuzentren (Fremdatome, ZGAe, LSn und deren Cluster) in der Probe; er ist im wesentlichen unempfindlich auf Umorientierungen der Streuzentren, die deren Konzentration nicht ändern. Genau auf diese Umorientierungen ist der Mössbauereffekt empfindlich, sofern sie in der nahen Umgebung von Mössbaueratomen stattfinden; er liefert dagegen keine Information über die Konzentration der Streuzentren. Mössbauer- und Widerstandsmessung ergänzen sich also gegenseitig.

Kap. II dieser Arbeit befaßt sich mit der Probenherstellung, dem Aufbau und der Durchführung der Messungen. In Kap. III wird der Strahlenschaden berechnet, den ^{25}MeV -Sauerstoffionen in einem Al-Ziarget erzeugen. Die Ergebnisse der Messungen werden in Kap. IV beschrieben und diskutiert. Eine Zusammenfassung der Arbeit findet sich in Kap. V, das Verzeichnis der zitierten Literatur in Kap. VI.

II Experimenteller Teil

IIA Herstellung von Al^{57}Co -Quellen

Die in /14/ zur Auswahl der Dotierungstechnik von Aluminium-Einkristallen mit ^{57}Co angestellten Überlegungen gelten für polykristalline Proben von Al entsprechend: Als einzig sinnvolle Technik kommt das Eindiffundieren (entweder in der Schmelze oder knapp unter dem Schmelzpunkt von Aluminium) von ^{57}Co in die Proben in Frage.

Nach /18/ beträgt die Löslichkeit von Co in Al am Schmelzpunkt nur ca. 100ppm; sie läßt sich /14,19/ zu 0,02ppm bei Raumtemperatur abschätzen. Diese Konzentration ist viel zu gering, um damit innerhalb vertretbarer Meßzeiten Mössbauerspektren mit guter Statistik zu erhalten. Allerdings können Co-Atome in der Sättigungskonzentration bei höheren Temperaturen "eingefroren" werden, wenn die Probe genügend schnell von hohen Temperaturen auf Raumtemperatur abgekühlt wird.

Nun sollen die Arbeitsschritte bei der Herstellung der für die Aufnahme der Dosiskurve verwendeten Al^{57}Co -Quelle kurz berichtet werden:

Die von der Firma Amersham Buchler, Braunschweig, gelieferte Aktivität lag in Form einer Lösung von trägerfreiem $^{57}\text{CoCl}_2$ in 0,1n HCl vor. Da HCl das Probenmaterial angreift, wurde es durch Gefriertrocknen entfernt; die Aktivität wurde anschließend in entsalztem, dreifach quarzdestilliertem Wasser aufgelöst.

Eine 6N-reine Al-Folie (Vereinigte Aluminium Werke, Bonn) wurde von 250µm auf 35µm Dicke abgeätzt (Ätzbad in Vol.-%: $70\text{H}_3\text{PO}_4$, $25\text{H}_2\text{SO}_4$, 5HNO_3 ; Temperatur ca. 80°C /6,16/) und anschließend in kochendem Wasser gespült. In einer gasdichten, Argon-gespülten Auftropfapparatur wurde dann die

⁵⁷CoCl₂-Lösung in Portionen von je 15µl auf die Al-Folie getropft² und mit Hilfe eines kleinen elektrischen Heizstrahlers eingetrocknet. Die aufgebrachte Aktivität belief sich insgesamt auf ca. 1,5mCi. Das ⁵⁷CoCl₂ wurde in 70%Ar, 30%H₂-Atmosphäre bei 350°C reduziert, das² metallische ⁵⁷Co dann in reiner Helium-Atmosphäre bei ca. 620°C in die Folie diffundiert. Um homogene Verteilung der ⁵⁷Co-Atome in der Probe sicherzustellen und die in /16/ erwähnten und auch selbst festgestellten Schwierigkeiten mit der Oxidhaut zu umgehen, wurde die Folie mit der aktiven Seite innen zusammengefoldet und in einem wassergekühlten Kupfertiegel mit einem Induktionsofen vakuumgeschmolzen. Die Schmelzkugel wurde geätzt, um Oberflächenverunreinigungen zu entfernen, und zwischen zwei V2A-Blechen in mehreren Schritten bis auf eine Dicke von ca. 40µm gewalzt; nach jedem Walzstich wurden zur Verhinderung von Kaltverschweißen die V2A-Bleche durch neue ersetzt. Anschließend wurde die Probe nochmals geätzt und bei 620°C in Helium getempert.

Eine Mössbauermessung der Probe zeigte neben der "substitutionellen" eine kleine Nebenlinie, die aufgrund ihrer Parameter als "vacancy"-Linie (s. Tab. IV.1) identifiziert werden konnte; ein kleiner Prozentsatz von ⁵⁷Co-Atomen hatte also LSn eingefangen. Um sie auszuheilen, wurde die Probe für einige Stunden bei 200°C getempert /11/ und wieder kurz geätzt; eine nochmalige Mössbauer-Kontrollmessung zeigte, daß die vacancy-Linie vollständig verschwunden war. Alle ⁵⁷Co-Atome waren also substitutionell im Al-Gitter gelöst.

Nun wurde die Probe in passende Form geschnitten und auf die Enddicke von 13µm geätzt. Ein Vergleich mit einer vorhandenen Quelle bekannter Aktivität ergab eine Aktivität der Probe von (128±10)µCi; das sind 8,5% der ursprünglich aufgetropften Aktivität.

IIB Rückstreuemessungen an inaktiven AlCo-Proben

Die auf Aluminium-Oberflächen stets vorhandene Oxidhaut hemmt die Diffusion von Kobalt von der Oberfläche in die Tiefe und erschwert dadurch, wie in /16/ erwähnt und bei eigenen Vorversuchen festgestellt wurde, die Herstellung von Quellen ausreichender Aktivität. Petry et al. /16/ sprechen von einer "Barriere", die das Oxid für Co-Atome bildet. Dies erscheint durch die Beobachtung gerechtfertigt, daß die Aktivitätsausbeute deutlich steigt, wenn man die Probe bei der Herstellung schmilzt. Andererseits zeigte sich bei den eigenen Vorversuchen mit Diffusion unterhalb des Schmelzpunktes, daß sich die Aktivitätsausbeute nicht signifikant ändert, wenn man von Diffusionszeiten von wenigen Stunden zu Diffusionszeiten von z. B. zwei Wochen übergeht. Dieses Verhalten läßt sich eher mit dem Begriff "Löslichkeit" beschreiben: Bei der Diffusionstemperatur scheint demnach die Löslichkeit von Co in Al_2O_3 größer zu sein als die von Co in Al.

In der Hoffnung, diese Diskrepanz zu klären und eventuell noch zusätzliche Hinweise auf den detaillierten Mechanismus der diffusionshemmenden Wirkung der Oxidhaut zu erhalten, wurden einige AlCo-Blindproben mit Hilfe der Rückstreuung von Sauerstoff- und Schwefelionen untersucht.

Es wäre wünschenswert gewesen, die für die Bestrahlungsexperimente tatsächlich verwendete Probe zu untersuchen; dies war aber aus drei Gründen nicht möglich: erstens hätte die von der Probe ausgehende γ -Strahlung einen unerwünschten Untergrund verursacht; zweitens wären durch den einfallenden Teilchenstrahl ^{57}Co -Atome aus der Probe gesputtert worden und hätten, wenn auch nur in geringem Ausmaß, die Apparatur kontaminiert; und drittens wäre die ^{57}Co -Konzentration mit 1,3atom-ppm (s. Kap. IVA) weit unter der Nachweisgrenze von

günstigstenfalls 0,1atom-% gelegen.

Deshalb wurden Blindproben untersucht. Sie wurden (bis auf den notwendigerweise höheren Co-Anteil von 1% bis 5%) völlig identisch und in der gleichen Apparatur wie die aktiven Vorversuchs-Proben hergestellt. Die Dicke aller Blindproben betrug 20 μ m. Sie sind folgendermaßen charakterisiert:

Al-0: Es wurde kein Co aufgebracht; die Folie wurde nur geätzt (Ätzbad wie in Kap. IIA). Sie wurde mit Rückstreuung von Schwefel-Ionen untersucht, um die Dicke der Oxidhaut zu bestimmen.

Al-1 wurde kurz geätzt, dann in wäßriger CaSO₄-Lösung eloxiert bis 40V Spannung; CoCl₂-Lösung wurde aufgetropft; Reduktion bei 350°C in H₂ für 30 min und Tempern bei 650°C in 70%Ar/30%H₂ für 30 min schloß sich an.

Die weiteren Proben wurden wie Al-1 behandelt, aber nicht eloxiert. Die Temperzeiten waren unterschiedlich:

Al-2: 3 Tage getempert

Al-3: 10 min getempert

Al-4: Das Tempern entfiel völlig, um Co nur an der Oberfläche zu haben.

Die Proben Al-1 bis Al-4 wurden mit Sauerstoff-Rückstreuung untersucht. Die Apparatur ist in /20/ beschrieben.

IIC Die Bestrahlungs- und Meßapparatur

Die Apparatur läßt sich in drei Gruppen aufgliedern:

- 1) das Vakuum- und Strahlführungssystem,
- 2) der Kryostat mit Probenhalterung,
- 3) die elektronische Ausrüstung zur Temperaturregelung, zur Widerstandsmessung und zur Aufnahme der Mössbauerspektren.

1) Das Vakuum- und Strahlführungssystem

Kernstück des Vakuum- und Strahlführungssystems (Abb. II.1) ist das 4"-Strahlrohr (3), das den Ionenstrahl vom zweiten 90°-Magnet des Erlanger Tandembeschleunigers bis zu der im Kryostat (10) eingebauten Probe führt. Das Vakuum im Strahlrohr wird aufrechterhalten vom Pumpstand (4) mit Diffusions- und Vorpumpe und Flüssigstickstoff-gekühltem Baffle. Die Flüssigstickstoff-gefüllte Kühlfalle (5) friert leicht kondensierbare Gase, vor allem Kohlenwasserstoffe, aus. Das 2"-Ventil (9) trennt während des Meßbetriebes das Kryostatvakuum vom Strahlrohrvakuum; während der Bestrahlungen, also bei geöffnetem Ventil (9), dient das ca. 1m lange dünne ($\varnothing$ 3cm) Rohr (7) durch seinen hohen Strömungswiderstand zum Entkoppeln von Kryostatvakuum ($<10^{-7}$ mbar Flüssighelium-gefüllt) und Strahlrohrvakuum (ca. 10^{-5} mbar). Mit dem Quadrupolmagnet (1) kann der Ionenstrahl auf die Probe fokussiert bzw. strichförmig defokussiert werden. Im "Beam-Viewer" (6) kann mit Hilfe eines in den Strahl einschwenkbaren Faradaybechers der Ionenstrom gemessen werden, und mit einem Quarz läßt sich die Strahlform und -lage beobachten. Die Strahllage kann korrigiert werden durch Ablenkmagnete ("Steerer") (2); diese werden außerdem zum periodischen Ablenken ("Wedeln") des Strahls verwendet.

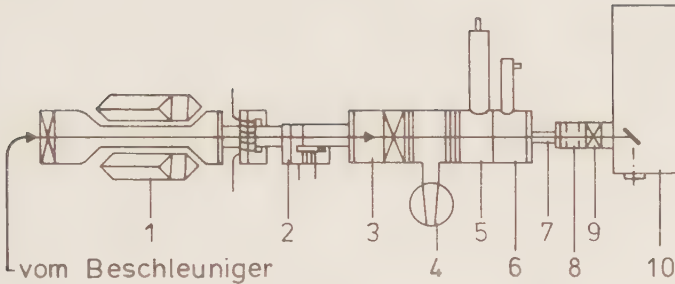


Abb. II.1: Das Vakuum- und Strahlführungssystem (nicht maßstabsgetreu!). Erläuterungen im Text.

Die dazugehörige Ablenkelektronik muß die Strahlintensität im Zeitmittel gleichmäßig auf die gesamte Probenfläche verteilen; dies erreicht sie, indem sie periodisch das Magnetfeld linear mit der Zeit an- und absteigen läßt. Sie besteht aus

- einer eisenlosen Pickup-Spule zwischen den Steerer-Polschuh
- hen, die eine Spannung proportional zur zeitlichen Ableitung des Magnetfeldes abgibt; diese Spannung wird von einem Vorverstärker um einen einstellbaren Faktor verstärkt;
- einem Rechteckgenerator konstanter Amplitude und einstellbarer Frequenz; er erzeugt die Sollwertfunktion für die Zeitableitung des Magnetfeldes;
- einem Differenzverstärker, der die Abweichung des Pickup-Signals vom momentanen Sollwert verstärkt;
- einem Integrator; dieser integriert das Ausgangssignal des Differenzverstärkers und erzeugt damit einen Spannungsver-

lauf, der die Abweichung des Magnetfeldes von seinem Sollwert kompensiert:

$$\int (\dot{H}_{\text{soll}} - \dot{H}_{\text{ist}}) dt = H_{\text{soll}}(t) - H_{\text{ist}}(t) ;$$

-und schließlich einem Leistungsverstärker zur Ansteuerung der Steererspulen.

Gegenüber der einfacheren auch denkbaren Schaltung eines Dreiecksgenerators mit Leistungsverstärker zur direkten Ansteuerung der Steerer hat diese Schaltung den Vorteil, daß Hysterese-Effekte in den Steerer-Weicheisenkernen weitgehend kompensiert werden.

Das Magnetfeld wurde mit einem Gaußmeter kontrolliert; tatsächlich war es in sehr guter Näherung dreiecksförmig, nur an den Umkehrpunkten zeigte es unbedeutende Abweichungen von der Dreiecksform. Die Amplitudenkonstanz des Dreiecksgenerators hat den Nachteil, daß die Magnetfeld-Amplitude nicht frequenzunabhängig, sondern umgekehrt proportional zur Frequenz ist. Dem stehen zwei Vorteile gegenüber: der Ionenstrahl streicht mit frequenzunabhängiger Geschwindigkeit über die Probe, und in den Steerern werden Spannungsspitzen durch zu hohe Flankensteilheit vermieden.

Die exakte Einstellung des Ionenstrahls und der Ablenkelektronik kann mit Hilfe der Viersektorenblende (8) während der Bestrahlung ständig kontrolliert werden: Vier isoliert montierte Nickelblenden begrenzen das Strahlprofil auf ein Rechteck von ca. 9mm Höhe und 12mm Breite; sie sind so justiert, daß der Strahlfleck die Probe auf ihrer gesamten Fläche bedeckt und an allen Rändern noch etwas überlappt. Trifft der Strahl auf eine der Blenden, so lädt sie sich positiv auf; damit die so entstehende Spannung gemessen wer-

den kann, ist jede Blende mit einer BNC-Buchse verbunden.

Während der Bestrahlungen wurde der Ionenstrahl üblicherweise zu einem senkrechten Strich defokussiert und in waagrechtter Richtung gewedelt. In dieser Situation lassen sich an den Blenden folgende Spannungsverläufe oszillographieren:

- Die obere und untere Blende liefern Gleichspannung, die bei korrekter Höheneinstellung des Strahls auf beiden Blenden gleich hoch ist; der Gleichspannung ist ein geringer Wechselspannungsanteil überlagert, und zwar auf beiden Blenden gleichphasig.

- Die linke und rechte Blende liefern jeweils einen Impuls, wenn sie vom Strahl getroffen werden; bei korrekter Strahl-Mitteneinstellung sind die beiden Impulse genau gegenphasig und besitzen gleiche Höhe und Breite. Ist die Amplitude der Strahlbewegung zu klein, so trifft der Strahl die Blenden nicht, und die Probe wird inhomogen bestrahlt; ist die Amplitude zu groß, dann erreicht im Zeitmittel nur noch ein unnötig geringer Anteil der Strahlintensität die Probe; man erkennt dies im Oszillogramm an großen Impulsbreiten. Bei den Bestrahlungen wird die Amplitude so eingestellt, daß sich für die Impulse ein Tastverhältnis von ca. 10% bis 20% ergibt. Es gelangen also 80% bis 90% der verfügbaren Strahlintensität auf die Probe.

2) Der Kryostat mit Probenhalterung

Der Kryostat (Abb. II.2) ist in seinen wesentlichen Teilen herkömmlich aus Vakuummantel, Flüssigstickstoffbehälter mit Strahlungsschilden und Flüssigheliumbehälter, jeweils mit den entsprechenden Zuführungen und γ -Austrittsfenstern, aufgebaut. Er ist so konstruiert, daß an einer ca. 1cm² großen Probe bei beliebigen Temperaturen zwischen 4,2K und Raumtemperatur Bestrahlungen und in situ Widerstands- und Mössbauermessungen durchgeführt werden können. Dazu muß die thermische Ankopplung der Probe ans Heliumbad in weiten Grenzen variabel gestaltet sein. Dies wird erreicht durch Anbau des Probenkopfes, der die Probe trägt, an einen separaten Behälter, das Probenrohr; dieses wird über ein Kaltventil mit flüssigem Helium aus dem Hauptbehälter versorgt. Zum Ausgleich von mechanischen Spannungen durch thermische Kontraktion /21/ ist das Probenrohr mit einem Faltenbalg versehen.

Die Probe ist unter 45° zur Vertikalen und zur Strahlrichtung angebracht, so daß ohne jeden Umbau oder Probentransfer unmittelbar nach den Bestrahlungen mit den Mössbauermessungen begonnen werden kann. Durch diese Einbauart erhöht sich zwar der Weg der Sauerstoffionen durch die Probe über ihre nach /22/ errechnete Reichweite, es konnten aber keinerlei Dopingeffekte beobachtet werden. Deshalb wurde die Probe nicht noch dünner geätzt; der weitere Aktivitätsverlust hätte sonst zu unverträglich langen Meßzeiten geführt.

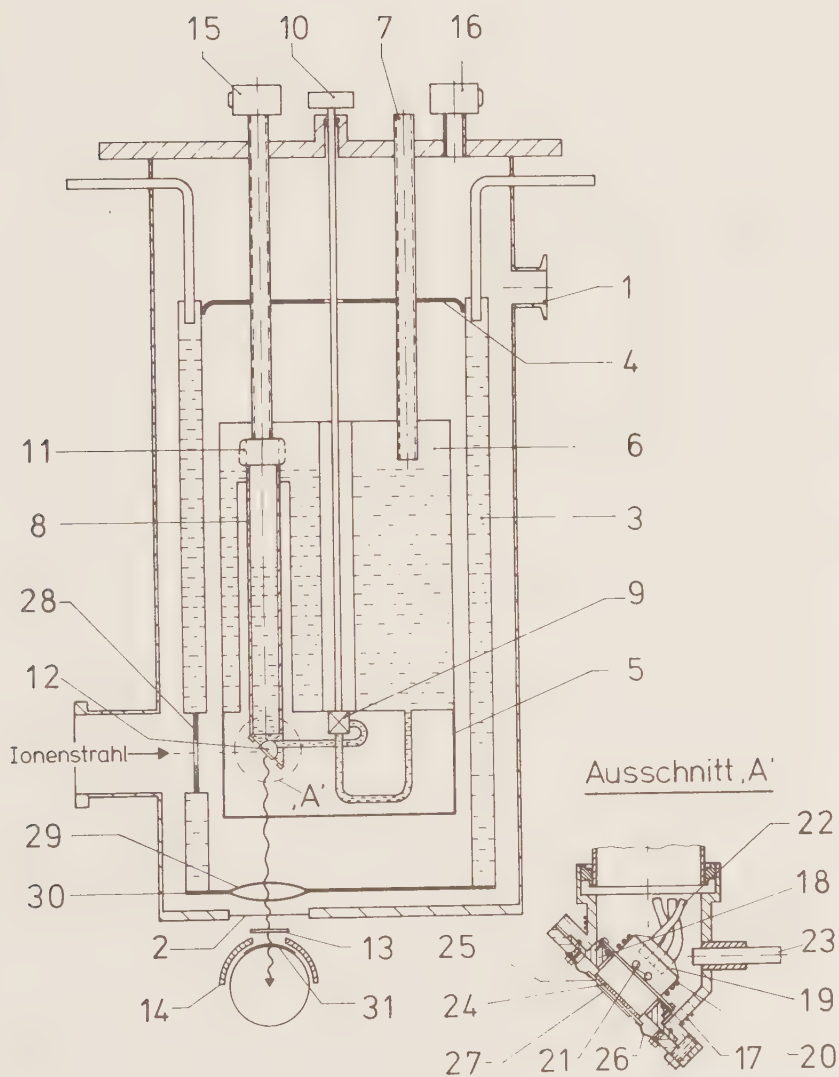
Der Kupfer-Probenkopf ist mit Hilfe einer Halterung aus eloxiertem Aluminium und zwei Indiumdichtungen vakuumdicht und elektrisch isoliert am unteren Ende des Probenrohres montiert. Er enthält in zwei Bohrungen einen Kohlewiderstand und einen geeichten Platinwiderstand zur Temperaturmessung und -Regelung. Außerdem ist er bifilar mit Mangandraht als Heizung bewickelt, und in eine Sackbohrung auf

seiner Rückseite ist Kupferlitze gelötet; diese soll durch ihre große Oberfläche einen guten Wärmeübergang ans flüssige Helium während der Bestrahlung bei tiefen Temperaturen sichern. Um die Gefahr eines großen Temperaturgefälles zwischen Probenkopf und Probenrohr auszuschalten, ist auf der Außenseite des Probenrohres eine weitere Heizwicklung angebracht; sie wurde bei den Experimenten in der Regel mit der Probenkopfheizung parallelgeschaltet.

Auf seiner Stirnseite trägt der Probenkopf die Mössbauerprobe. Damit ihr Widerstand meßbar ist, muß sie von ihrer Unterlage elektrisch isoliert sein, bei gleichzeitig guter thermischer Ankopplung an den Probenkopf. Deshalb ist sie mit Thermoguss 2000 (Fa. Klebchemie KG, Weingarten) auf ein Saphirplättchen von 1mm Dicke gekittet. Der Saphir ist auf seiner Rückseite mit Einbrennsilber versehen, um ihn lötbar zu machen. Er ist mit dem niedrigschmelzenden Lot L41 (in Gewichts-%: 22,2 Pb, 40,3 Bi, 8,1 Cd, 17,7 In, 10,7 Sn, 1,0 Te) auf den Probenkopf gelötet. Alle verwendeten Materialien stellen durch ihre große Wärmeleitfähigkeit bei tiefen Temperaturen einen guten thermischen Kontakt zwischen Mössbauerquelle und Probenkopf her. Zusätzlich fixieren vier Andruckfedern aus Phosphorbronze den Saphir in seiner Lage.

Abb. II.2: Der Bestrahlungs- und Meßkryostat mit Probenhalterung, schematisch

1 Vakuumpumpflansch	17 Probenrohr-Heizung
2 Berylliumfenster	18 Probenkopf-Halterung
3 Flüssigstickstoff-Behälter	19 Probenkopf
4 Oberer Strahlungsschild	20 Probenkopf-Heizung
5 Superisolation für Probenkopf und Flüssighelium-Kapillare	21 Bohrungen für die Widerstandsthermometer
6 Flüssighelium-Behälter	22 Kupferlitze
7 Flüssighelium-Füllrohr (He- Abgasleitung nicht gezeichnet)	23 Flüssighelium- Einlaßkapillare
8 Probenrohr	24 Lot L41
9 Kaltventil	25 Saphirplättchen
10 Betätigung für Kaltventil	26 Andruckfeder
11 Faltenbalg	27 ⁵⁷ Al Co-Probe
12 Probenhalterung	28 Strahlungsschild mit Strahleintrittsöffnung
13 Absorber (bewegt)	29 Superisolation
14 Bleiabschirmung	30 Unt. Strahlungsschild
15 Elektr. Anschlüsse Probenkopf	31 Proportionalzählrohr
16 " " Probe	



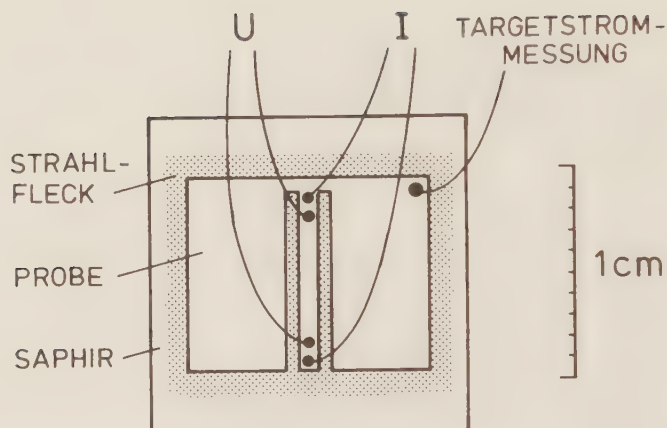


Abb. II.3: Die Probengeometrie

3) Die elektronische Ausrüstung zur Temperaturregelung, zur Widerstandsmessung und zur Aufnahme der Mössbauerspektren

Zur Regelung der Probentemperatur diente ein PID-Regler (Fa. Artronix, USA) mit eingebauter Konstantstromquelle. Die beiden im Probenkopf eingebauten Temperaturfühler sind strommäßig hintereinandergeschaltet. Die Spannungsmessung kann über einen externen Umschalter wahlweise an den Kohle- oder den Platinwiderstand gelegt werden. Außerdem kann, ebenfalls extern, Strom und Spannung umgepolt werden, um parasitäre Thermospannungen zu erkennen; diese erwiesen sich stets als vernachlässigbar klein.

Die Kurzzeitkonstanz der Temperaturregelung über 10 Minuten

ist bei allen Temperaturen besser als $\pm 0,05\text{K}$; die Langzeitkonstanz bei Bestrahlungen bei 100K ist wegen des stark schwankenden Wärme-Inputs durch den Ionenstrahl schlechter, aber mit $\pm 0,5\text{K}$ immer noch kleiner als die Ungenauigkeit der absoluten Temperatureinstellung (s. Kap. IID). Bei Mössbauermessungen beträgt die Langzeitkonstanz über typisch 5 Tage $\pm 0,3\text{K}$. Zur genauen Temperaturkontrolle wird ein Differentialvoltmeter (Fa. Hewlett-Packard) verwendet.

Dieses dient in erster Linie zur Spannungsmessung bei der Messung des Probenwiderstandes. Den Strom dazu liefert ein Präzisions-Konstantstromgerät (Fa. Mega-Physik). Damit dessen maximaler Ausgangsstrom von $1,000\text{A}$ an der Probe genügend Spannungsabfall erzeugt, wird nur der Widerstand eines schmalen Probenstreifens gemessen; Abb. II.3 zeigt die Geometrie der Probe. Die Zuführungsdrähte sind mit dem für Aluminium geeigneten Lot Soldamoll (Fa. Degussa, Hanau) angelötet. Auch bei der Messung des Probenwiderstandes sind zur Eliminierung von parasitären Thermospannungen Strom und Spannung mit Schaltern umpolbar.

Zur Aufnahme der Mössbauerspektren wird die für solche Messungen übliche Elektronik verwendet. Als elektromechanischer Absorberantrieb dient ein Antriebskopf der Fa. Frieske und Höpfner, Erlangen, zusammen mit einem in /23/ beschriebenen Aufbau zur Übertragung der Geschwindigkeit auf den Absorber. Der Absorber wird sinusförmig bewegt; er befindet sich (s. Abb. II.2) außerhalb des Kryostaten auf Raumtemperatur. Für die Zuordnung der Absorber-Momentangeschwindigkeit zur entsprechenden Kanalnummer des verwendeten Vielkanalanalysators (Canberra 8100) wird nicht der Multichannel-Scaling-Mode verwendet, sondern ein Analog-Digital-Wandler tastet die geschwindigkeitsproportionale Spannung der Pickup-Spule ab. Diese Methode erfordert zwar die simultane Aufnahme eines Vergleichsspektrums, ist aber auf

mechanische Störungen des Antriebskopfes weitgehend unempfindlich. Die Spektren werden auf Lochstreifen ausgestanzt und dann auf einem Rechner des Typs PDP-11/10 (Digital Equipment Corporation) verarbeitet und ausgewertet.

IID Bestrahlungen, Widerstands- und Mössbauermessungen

Die ⁵⁷Al Co-Probe wurde bei 100K mit Sauerstoffionen einer Energie von 25MeV bestrahlt. Als Bestrahlungstemperatur wurde 100K gewählt, weil in Aluminium bei dieser Temperatur ZGae beweglich, LSn aber unbeweglich sind, und außerdem ZGae, die von Co-Atomen eingefangen wurden, an diesen haften bleiben; sie werden erst oberhalb von 200K wieder freigegeben /6/. Die Co-Atome können also während der Bestrahlung ZGae agglomerieren.

Um 100K zu erreichen, wird bei Flüssighelium-gefülltem Kryostat und geschlossenem Kaltventil (s. Abb. II.2) der Probenkopf geheizt. Mit Hilfe des Platinwiderstandes läßt sich zwar die Probenkopftemperatur exakt ermitteln, die Temperatur der Probe selbst läßt sich aber nicht messen; sie muß deutlich höher liegen, da praktisch die gesamte Energie des Ionenstrahls in der Probe deponiert wird. Die Temperaturerhöhung der Probe gegenüber dem Probenkopf hängt also ab von der Strahlintensität und von der Wärmeleitfähigkeit der Materialien (Thermoguss, Saphir, Einbrennsilber, Lot), die zwischen Probe und Probenkopf liegen.

Das Problem der Probentemperaturmessung läßt sich lösen, indem man die Probe selbst als Temperaturfühler verwendet und ihren Widerstand bei Bestrahlung mißt; das ist allerdings nur zu Beginn der Bestrahlung möglich, solange die Widerstandserhöhung durch Strahlenschäden noch vernachlässigbar klein ist.

Diese Messung wurde durchgeführt. Vor der ersten Bestrahlung wurde die Temperaturabhängigkeit des Probenwiderstandes aufgenommen. Bei Bestrahlungsbeginn wurde über den Wider-

stand die Temperatur der Probe ermittelt; es zeigte sich, daß sie bei einem für die Bestrahlungen typischen Targetstrom von 100nA um knapp 5K über der des Probenkopfes lag. Deshalb wurde bei allen Bestrahlungen die Probenkopftemperatur auf 95K geregelt.

Der Targetstrom wurde direkt von der Probe über einen eigenen Anschlußdraht (s. Abb. II.3) abgenommen. Der Korrekturfaktor für Sekundärelektronenemission wurde mit Hilfe eines zu diesem Zweck eingebauten Repellers in einer gesonderten Strahlzeit ermittelt; er betrug unabhängig von Strahlform, -Lage und -Bewegung $0,35 \pm 0,045$. Der Repeller konnte aus Geometrie Gründen nicht ständig eingebaut bleiben: entweder wären die Mössbauermessungen nicht möglich gewesen, oder der Repeller hätte nach unten offen sein müssen und damit an Wirksamkeit verloren. Deshalb wurde bei den Bestrahlungen auf ihn verzichtet und alle gemessenen Ströme und Dosen mit obigem Faktor korrigiert. Die jeweilige Dosis wurde durch elektronische Integration (Spannungs-Frequenz-Wandler, Impulzzähler) des Targetstromes ermittelt.

Die Probe wurde am Erlanger Tandembeschleuniger in 8 Strahlzeitexperimenten mit O^{4+} -Ionen einer Energie von 25MeV bestrahlt. Die kleinste, anfänglich aufgebrachte Dosis war $\Phi = 2,8 \cdot 10^{13} \text{ Ionen/cm}^2$; von Strahlzeit zu Strahlzeit wurde die Dosis jeweils ungefähr verdoppelt; die Gesamtdosis nach der 8. Bestrahlung betrug $\Phi = 8,9 \cdot 10^{15} \text{ Ionen/cm}^2$. Zwischen den Bestrahlungen wurde die Probe auf 4,2K gehalten (Ausnahme: nach der 7. Bestrahlung zeitweise bis auf 70K, s. u.). Ein Ausheilen der bei 100K erzeugten Strahlenschäden war also ausgeschlossen. Die bei den Bestrahlungen jeweils aufgebrachten Gesamtdosen sind in Tab. IV.2 angegeben. Nach jeder Bestrahlung wurde bei 4,2K mehrmals der Probenwiderstand gemessen und mit einem Pd^{57} Fe-Absorber auf

Raumtemperatur ein Mössbauerspektrum aufgenommen. Zur Widerstandsmessung wurden Ströme von 0,2A bis 1,0A in 0,2A-Schritten in beiden Polungen durch die Probe geschickt und jeweils die an der Probe abfallende Spannung gemessen. An die ermittelten Strom/Spannungs-Wertepaare wurde eine Gerade angepaßt; deren Steigung ergab den Widerstandswert. Die Abweichungen der Wertepaare von einer Gerade waren vernachlässigbar; die Probe erwärmte sich also durch die Messung nicht nennenswert.

Nach der 7. Bestrahlung ($\Phi = 3,2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$) wurden Mössbauerspektren bei 4,2K und zusätzlich bei 25K, 35K, 50K und 70K aufgenommen, um die Temperaturabhängigkeit der Debye-Waller-Faktoren von ^{57}Fe -Atomen in ungestörter und in durch ZGAe verzerrter Umgebung vergleichen zu können.

III Der Strahlenschaden von 25MeV O^{4+} -Ionen in Aluminium

Sauerstoffionen der Energie 25MeV haben in Aluminium eine Reichweite von etwas mehr als $14\mu m$ /22/. Sie geben in der Probe praktisch ihre gesamte Energie ab. Der Energieverlust geschieht durch elektronische Anregungen und durch Bildung von primären Rückstoßatomen, die ihrerseits weitere Probenatome anstoßen und damit eine Defektkaskade erzeugen können, also einen Bereich mit einigen ZGAen und LSn. Bei 100K Bestrahlungstemperatur sind die LSn unbeweglich und die ZGAe beweglich. Die ZGAe können durchs Gitter diffundieren und mit LSn rekombinieren; dies führt bei gleicher Dosis zu einer geringeren Schädigung als bei Bestrahlungstemperaturen unterhalb der Ausheilstufe I, d. h. bei Al unterhalb 25K. Daneben können die ZGAe zu Fremdatomen wandern und von diesen eingefangen werden, und sie können zu Clustern agglomerieren; also bleibt auch bei Bestrahlungstemperaturen oberhalb der Ausheilstufe I die Probe strahlengeschädigt. Hier soll nur der durch die Bestrahlung momentan erzeugte Strahlenschaden berechnet werden; Ausheileffekte werden nicht berücksichtigt.

Ein häufig gebrauchtes Maß für die Größe des Strahlenschadens ist die Anzahl der Verlagerungen, die ein Targetatom im Mittel erlitten hat: "dpa" für "displacements per atom". Damit lassen sich Strahlenschädigungen beliebiger Targets durch beliebige Projektile miteinander vergleichen.

Die Anzahl n der Verlagerungen pro Targetatom ist gegeben durch /24,25/

$$n = \Phi \cdot \sigma_d = \int_{T_d}^{T_{\max}} \frac{d\sigma}{dT} v(T) dT \quad .$$

Dabei ist Φ das Zeitintegral der auf das Target einfallenden Teilchenstromdichte φ , also kurz die Dosis, in Projektil-Ionen pro cm^2 . Der Verlagerungswirkungsquerschnitt σ_d ergibt sich als Integral des differentiellen Wirkungsquerschnitts $\frac{d\sigma}{dT}$ für die Erzeugung eines primären Rückstoßatoms der Energie T , multipliziert mit der Anzahl $v(T)$ von Atomen, die von einem primären Rückstoßatom der Energie T von ihrem Platz verlagert werden, über die übertragene Energie T . Um überhaupt ein Atom verlagern zu können, ist eine Schwellenenergie T_d nötig; die obere Integrationsgrenze T_{max} ist die aufgrund der Stoßkinematik maximal übertragbare Energie

$$T_{\text{max}} = 2 E_P \cdot \frac{1}{1 + \frac{1}{2} \left(\frac{A_P}{A_T} + \frac{A_T}{A_P} \right)} .$$

(A: Masse, E: Energie; die Indizes P bzw. T beziehen sich hier und im folgenden auf Projektil- bzw. Targetatome.)

IIIA Abschätzung anhand des Kinchin-Pease-Modells

Für grobe Abschätzungen genügt es, als differentiellen Wirkungsquerschnitt den Rutherford-Querschnitt zu verwenden:

$$\frac{d\sigma}{dT} = \frac{d\sigma_R}{dT} = \frac{(Z_P Z_T e^2)^2}{16 \pi \epsilon_0^2} \cdot \frac{A_P}{A_T} \cdot \frac{1}{E_P} \cdot \frac{1}{T^2},$$

und $v(T)$ läßt sich nach dem Kinchin-Pease-Modell /26/ berechnen:

$$v(T) = \begin{cases} 0 & \text{für } T < T_d, \\ 1 & T_d \leq T < 2T_d, \\ T/2T_d & 2T_d \leq T < E_i^d, \\ E_i^d/2T_d & E_i^d \leq T \leq T_{\max}^i. \end{cases}$$

Dieses Modell nimmt an, daß die Hälfte der Energie eines primären Rückstoßatoms in Verlagerungen und die andere Hälfte in Gitterschwingungen übergeht; allerdings kann nur ein maximaler Energiebetrag E_i ("Ionisationsenergie") Verlagerungen erzeugen; besitzt ein primäres Rückstoßatom eine höhere Energie, so wird der über E_i hinausgehende Anteil durch inelastische Stöße mit Elektronen verbraucht. Nach /27/ gilt genähert:

$$E_i = A_T \cdot \text{keV}.$$

In dieser groben Abschätzung gilt dann:

$$\begin{aligned} \sigma_d &= \int_{T_d}^{T_{\max}} \frac{d\sigma}{dT} v(T) dT = \\ &= \frac{(Z_P Z_T e^2)^2}{16 \pi \epsilon_0^2} \cdot \frac{A_P}{A_T} \cdot \frac{1}{E_P} \cdot \frac{1}{2T_d} \left(2 + \ln \frac{E_i}{T_d} - \frac{E_i}{T_{\max}} \right). \end{aligned}$$

Bei Bestrahlung von Aluminium mit 25MeV-Sauerstoff-Ionen ist $Z_P = 8$, $A_P = 16$, $Z_T = 13$, $A_T = 27$, $E_P = 25\text{MeV}$, $E_i = 27\text{keV}$ und $T_{\text{max}} = 0,935 \cdot E_P = 23,4\text{MeV}$. Die Schwellen-Energie T_d hängt von der Flugrichtung des primären Rückstoßatoms relativ zur Kristallorientierung ab; bei polykristallinen Proben muß ein Effektivwert verwendet werden. Die Literaturangaben für ein effektives T_d streuen stark: Sie reichen von 16eV /28/ über 27eV /29/ bis zu 66eV /30/. Der letzte Wert wurde mit Elektronenbestrahlung gemessen. Es erscheint sinnvoll, als Mittelwert

$$T_d = 25\text{eV}$$

anzunehmen. Mit diesen Größen findet man

$$\sigma_d = 2,8 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$$

als erste grobe Abschätzung.

IIIB Berechnung unter realistischeren Annahmen

Die Berechnung des Strahlenschadens läßt sich in drei Punkten verfeinern:

- 1) Die Abhängigkeit der Zahl v verlagelter Atome je primäres Rückstoßatom von dessen Energie T ist im Kinchin-Pease-Modell etwas "eckig". Ein modifiziertes Kinchin-Pease-Modell /31/ dürfte eine bessere Annäherung an die Wirklichkeit darstellen:

$$v(T) = \begin{cases} 0 & \text{für } T < T_d, \\ 1 & T_d \leq T < 2,5 T_d, \\ \frac{T}{2,5 T_d} \left(1 - (0,1 + 2,3 k_T) \cdot \left(\frac{T}{T} \right)^{0,19} \right) & 2,5 T_d \leq T \leq 3 T_T, \\ \frac{T}{2,5 T_d} \frac{1}{k_T} \left(1 - \left(\frac{T}{T} \right)^{0,2} \right) & 3 T_T < T. \end{cases}$$

In diesem Modell erzeugt nicht die Hälfte, sondern nur 40% von T Verlagerungen; in einem Zwischenbereich ($T \leq 3 T_T$) steigt v etwas schwächer als linear mit T , und bei hohen Energien ($T > 3 T_T$) nähert es sich langsam dem Grenzwert

$$v_{\text{grenz}} = \frac{T}{2,5 T_d} \frac{1}{k_T} \quad \text{an.}$$

Die Energie T_T und die Konstante k_T sind für das Targetmaterial charakteristisch:

$$T_T = \frac{Z_T^{7/3}}{11,49} \text{ keV}, \quad k_T = 0,134 \frac{Z_T^{2/3}}{A_T^{1/2}}.$$

Für ein Al-Target ist $T_T = 34,6 \text{ keV}$ und $k_T = 0,143$.

- 2) Der differentielle Wirkungsquerschnitt für die Erzeugung primärer Rückstoßatome nähert sich nur bei hohen übertragenen Energien T dem Rutherford-Wirkungsquerschnitt an;

bei kleinen Energieüberträgen ist er wegen der Abschirmung der Kernladung durch die Hüllenelektronen kleiner. Dies kann dargestellt werden durch ein geeignetes Wechselwirkungspotential /32/ oder durch eine Form des Wirkungsquerschnitts, die bei kleinen Energien weniger stark als mit T^{-2} ansteigt /24/:

$$\frac{d\sigma}{dT} = \begin{cases} 0,35 \pi a^2 E_A^{1/2} T^{-3/2} & \text{für } T \leq (0,35)^{-2} E_A \\ \frac{d\sigma_R}{dT} = \pi a^2 E_A T^{-2} & T > (0,35)^{-2} E_A \end{cases}$$

$$\text{mit } E_A = \left(\frac{Z_P Z_T e^2}{4 \pi \epsilon_0 a} \right)^2 \cdot \frac{A_P}{A_T} \cdot \frac{1}{E_P}$$

Dabei wurde die "Abschirmlänge"

$$a = 0,8853 \cdot a_0 \cdot (Z_P^{2/3} + Z_T^{2/3})^{-1/2} \quad \text{mit}$$

$$a_0 = \frac{\epsilon_0 h^2}{\pi m e^2} = 5,29 \cdot 10^{-11} \text{ m} \quad (\text{Bohrscher Radius})$$

eingeführt.

- 3) Wenn, wie in unserem Fall, die Reichweite der Projektile vergleichbar mit der Probendicke ist, nimmt die Energie E_P der Projektile mit der Eindringtiefe d im Target stark ab. Also wird $T_{\max}$, $\frac{d\sigma}{dT}$ und damit σ_d von d abhängig. Deshalb wurde nach /22/ die mittlere Projektilenergie $\bar{E}_P(d)$ in Schritten von je $1 \mu\text{m}$ berechnet.

Mit diesen drei Verbesserungen konnte $\sigma_d(d)$ berechnet werden. In Tabelle III.1 sind in Abhängigkeit von d folgende Größen aufgetragen:

- die mittlere Projektilenergie $\bar{E}_P$
- die maximale übertragbare Energie $T_{\max}$

-der Verlagerungswirkungsquerschnitt $\sigma_d = \int_{T_d}^{T_{\max}} \frac{d\sigma}{dT} v(T) dT$

-der Wirkungsquerschnitt für die Erzeugung von primären

$$\text{Rückstoßatomen } \sigma = \int_{T_d}^{T_{\max}} \frac{d\sigma}{dT} dT$$

-die mittlere Zahl $\bar{v} = \frac{\sigma_d}{\sigma}$ von Atomen, die ein primäres Rückstoßatom pro Stoß verlagert

-die mittlere freie Weglänge eines Projektilatoms zwischen zwei Stößen $\bar{\lambda} = \frac{1}{N\sigma}$ (N: Konzentration an Targetatomen; für Al: $N=6,0 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$)

-die mittlere auf ein primäres Rückstoßatom übertragene

$$\text{Energie /33/ } \bar{T} = \frac{1}{\sigma} \int_{T_d}^{T_{\max}} T \cdot \frac{d\sigma}{dT} dT$$

Man erkennt mit steigender Eindringtiefe das Absinken der Projektilenergie und der dazu proportionalen maximalen übertragbaren Energie. Während sich die Größen σ_d , σ und $\bar{\lambda}$ von der Probenoberfläche bis zu der höchsten berechneten Eindringtiefe von $13\mu\text{m}$ ungefähr um eine Größenordnung ändern, bewegt sich die Zahl der in einem Stoßprozeß verlagerten Atome und die pro Primäratom-Stoß im Mittel übertragene Energie in vergleichsweise engen Grenzen. Die Tatsache, daß $\bar{T}$ stets klein ist gegen $T_{\max}$, reflektiert die starke Gewichtung kleiner Energieüberträge durch den Rutherford- und selbst noch durch den modifizierten Wirkungsquerschnitt. Aus diesem Grund sind die berechneten Ergebnisse auch relativ empfindlich auf die Größe der eingesetzten Schwellenenergie T_d .

Auch die verfeinerte Ermittlung des Strahlenschadens ist mit Unsicherheiten behaftet. Diese liegen bei

- der Berechnung der Reichweite von Sauerstoff-Projektilen in Al-Targets /22/; die Autoren geben keinen Fehler an, sprechen aber von "exzellenter Übereinstimmung" mit experimentellen Daten.
- der funktionalen Abhängigkeit der mittleren Zahl von Verlagerungen je primäres Rückstoßatom von dessen Energie
- der Form des differentiellen Wirkungsquerschnittes, der die Wechselwirkung der Projektilen mit den Targetatomen beschreibt. Hier wurden bereits mit einem gewissen numerischen Aufwand Verbesserungen angebracht /32/; jedoch ist das zugrundegelegte Thomas-Fermi-Potential auch nur eine Näherung.

Es ist nicht möglich, aus diesen Unsicherheiten quantitativ einen Fehler für den Verlagerungswirkungsquerschnitt zu bestimmen. In diesem Sinne darf die Ermittlung des Strahlenschadens nur als Abschätzung verstanden werden.

Tab. III.1: Energien, Wirkungsquerschnitte, mittlere Zahl von Verlagerungen und freie Weglänge in Abhängigkeit von der Eindringtiefe d.

Die Größen werden im Text erklärt.

d	$\bar{E}_P$	$\Gamma_{\max}$	σ_d	σ	$\bar{\nu}$	$\bar{\lambda}$	$\bar{T}$
μm	MeV	MeV	$10^{-18} \frac{2}{\text{cm}}$	$10^{-18} \frac{2}{\text{cm}}$		$\text{\AA}$	eV
0	25,0	23,4	2,00	0,67	2,99	2500	344
1	23,3	21,8	2,14	0,72	2,97	2330	342
2	21,6	20,2	2,31	0,77	3,00	2150	340
3	19,8	18,5	2,52	0,84	3,00	1980	338
4	18,0	16,9	2,77	0,93	2,98	1800	336
5	16,2	15,1	3,08	1,03	2,99	1620	335
6	14,3	13,4	3,47	1,15	3,02	1450	335
7	12,4	11,6	3,98	1,30	3,06	1280	337
8	10,4	9,76	4,67	1,50	3,11	1110	342
9	8,47	7,91	5,68	1,76	3,23	950	351
10	6,49	6,07	7,24	2,14	3,38	780	367
11	4,56	4,26	9,97	2,72	3,67	610	393
12	2,74	2,57	15,7	3,76	4,18	440	439
13	1,23	1,15	31,5	6,05	5,21	280	533

IV Ergebnisse und Diskussion

IVA Widerstands- und Mössbauermessungen vor Bestrahlung

Abb. IV.1 zeigt ein Mössbauerspektrum der Probe bei 4,2K, gemessen mit einem ^{57}Fe -angereicherten Natriumferrocyanid-Absorber ($250\mu\text{g } ^{57}\text{Fe}/\text{cm}^2$) bei Raumtemperatur. Es wurde mit einer einzelnen Lorentzkurve gefittet. Die mit 0,317mm/s etwas große Linienbreite rührt vom ^{57}Fe -Absorber her; der für die weiteren Messungen verwendete $\text{Pd } ^{57}\text{Fe}$ -Absorber (s. Kap. IID) hätte eine kleinere Linienbreite geliefert, war aber erst

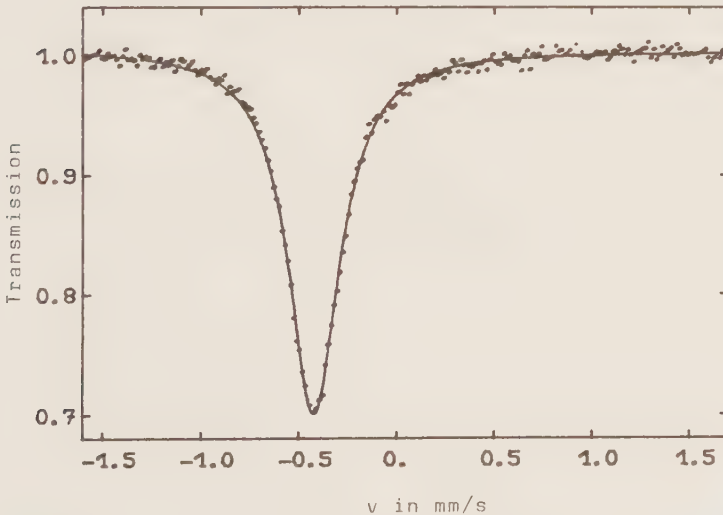


Abb. IV.1: Mössbauerspektrum der unbestrahlten Probe bei 4,2K. Absorber: $\text{Na}_4\text{Fe}(\text{CN})_6$ bei Raumtemperatur

nach der ersten Bestrahlung verfügbar. Aber auch mit dem verwendeten Absorber läßt sich erkennen, daß weniger als 1% (das ist die Auflösungsgrenze dieser Messung) aller ⁵⁷Co-Atome woanders als auf Gitterplätzen sitzen. Praktisch alle ⁵⁷Co-Atome befinden sich also substitutionell auf Al-Gitterplätzen.

Zum Vergleich mit den nach Bestrahlung gemessenen Spektren (s. Kap. IVC) wurde in Abb. IV.1 die Geschwindigkeitsachse so verschoben, als ob der Pd ⁵⁷Fe-Absorber verwendet worden wäre.

Außer Mössbauerlinien, die von Co-Clustern bzw. von nicht vollständig in die Probe eindiffundiertem ⁵⁷Co /34/ oder von Verbindungen von Co und Al /18/, oft analog den Fe-Al-Verbindungen /35-42/, herrühren, wären noch folgende Linien denkbar:

-Die interstitial-Linie (i-Linie, eigentlich eine Überlagerung mehrerer nicht aufgelöster Quadrupoldoublets /14/) rührt von ⁵⁷Co-Atomen her, die in ihrer nächsten Nachbarschaft ein oder mehrere ZGAe eingefangen haben; sie sollte vor Bestrahlung nicht beobachtet werden, da bei der Herstellung der Probe Temperaturen weit über Raumtemperatur erreicht werden; bereits deutlich unterhalb Raumtemperatur werden aber von Co- bzw. Fe-Atomen eingefangene ZGAe vollständig wieder freigegeben /6/.

-Die vacancy-Linie (v-Linie) stammt von ⁵⁷Co-Atomen, in deren unmittelbarer Nachbarschaft sich eine LS befindet /9-12,17/; sie sollte nur beobachtet werden, wenn die Probe bei der Herstellung so schnell abgekühlt wurde, daß die LS-Konzentration von hohen Temperaturen eingefroren wurde.

In Tab. IV.1 sind nach /16,17/ die Mössbauerparameter der beiden Linien zusammen mit denen der substitutionellen Linie (s-Linie) angegeben; die Positionen beziehen sich

auf einen Pd^{57} Fe-Absorber bei Raumtemperatur. Die Breiten hängen von der Qualität des Absorbers ab; sie liegen mit dem verwendeten Absorber bei 0,29mm/s.

Tab. IV.1: Mössbauerparameter der s-, v- und i-Linie
in mm/s

	s-Linie	v-Linie	i-Linie
Position	-0,437±0,001	-0,12±0,02	-0,05±0,02
Quadrupolaufsp.	0	0,00±0,02	0,17±0,03

Ein Blick auf Abb. IV.1 zeigt, daß weder die v- noch die i-Linie zu sehen sind; auch ein Fitversuch mit diesen Linien brachte ein negatives ^{57}Co Ergebnis, was die obige Aussage bestätigt, daß sich alle ^{57}Co -Atome auf Gitterplätzen befinden.

Aus der Aktivität der Probe $A_0 = 128\mu\text{Ci}$ (s. Kap. IIA) läßt sich über

$$N(^{57}\text{Co}) = \int_0^{\infty} \dot{N}(t) dt = A \cdot \frac{t_{1/2}}{\ln 2} \quad \text{mit } t_{1/2} = 270\text{d}$$

die Gesamtzahl aller ^{57}Co -Atome in der Probe

$$N(^{57}\text{Co}) = 1,6 \cdot 10^{14}$$

und daraus und aus den Probendimensionen die Konzentration der ^{57}Co -Atome

$$c(^{57}\text{Co}) = 1,3\text{atom-ppm} \quad \text{berechnen.}$$

Der spezifische Widerstand ρ_F der Probe bei 4,2K wird gemäß

$$\rho_F(4,2\text{K}) = R(4,2\text{K}) \cdot \frac{\rho_F(273\text{K})}{R(273\text{K})} \quad \text{bestimmt.}$$

Der Geometriefaktor $G := \frac{\rho_F(273K)}{R(273K)}$ ergibt sich mit

$$\begin{aligned}\rho_F(273K) &= (2,428 \pm 0,002) \mu\Omega\text{cm} /43/ \text{ und dem Meßwert} \\ R(273K) &= (15,70 \pm 0,01) \text{ m } \Omega \quad \text{zu} \\ G &= (1,546 \pm 0,002) \mu\text{m}.\end{aligned}$$

Damit wurde nach Anwendung einer Size-Effekt-Korrektur /44/ ein spezifischer Widerstand der unbestrahlten Probe

$$\rho_B(4,2K) = (20,56 \pm 0,02) \text{ n}\Omega\text{cm} \quad \text{gefunden.}$$

Verwendet man zum Vergleich die für Co in Al charakteristische Widerstandserhöhung /43/

$$\Delta\rho(\text{Co}) = 0,36 \text{ n}\Omega\text{cm/atom-ppm} ,$$

so erwartet man mit der oben berechneten ⁵⁷Co-Konzentration

$$\rho_B(4,2K) = 0,47 \text{ n}\Omega\text{cm} .$$

Der weitaus größte Widerstandsanteil bei 4,2K rührt also von anderen Verunreinigungen her. Es gibt Hinweise /45,46/, daß diese Verunreinigungen bereits in der gelieferten ⁵⁹Co Aktivität enthalten waren, und zwar möglicherweise als ⁵⁷Co (die Aktivität wäre dann nicht trägerfrei) oder als Fe, da ⁵⁷Co zu ⁵⁷Fe zerfällt.

Bezieht man die Widerstandserhöhung auf Co, so erhält man einen totalen Co-Gehalt von knapp 60ppm; bezieht man sie auf Fe mit

$$\Delta\rho(\text{Fe}) = 0,54 \text{ n}\Omega\text{cm/atom-ppm} \quad /43/ ,$$

so kommt man auf einen Fe-Gehalt von knapp 40ppm.

IVB Analyse der Rückstreuemessungen

Die Rückstreuemessungen an den AlCo-Blindproben (s. Kap. IIB) lieferten folgende Ergebnisse:

- 1) Bei der nur abgeätzten, nicht mit Co dotierten Probe Al-0 ist die Oxidhaut weniger als 20nm dick.
- 2) Bei den vier dotierten Proben (auch bei den nicht eloxierten) ist die Oxidhaut dicker, nämlich ca. 70nm bis 130nm mit in die Tiefe langsam abfallender Sauerstoffkonzentration. Ab ca. 200nm findet man praktisch reines Aluminium.

Offenbar begünstigt die Dotierung das Wachstum der Oxidhaut.

- 3) Eine einigermaßen scharfe Grenze zwischen Oxidhaut und Al-Bulk ist nur bei der eloxierten (dotierten und 30 min getemperten) Probe Al-1 und bei der dotierten nicht getemperten Probe Al-4 erkennbar. In den Proben Al-2 und Al-3 ist keine scharfe Grenze vorhanden, die Sauerstoffkonzentration sinkt mit der Tiefe.
- 4) Chlor(id) wurde gefunden auf der reduzierten nicht getemperten Probe Al-4 und bis mindestens 500nm Tiefe der 10 min getemperten Probe Al-3. In Al-1 (eloxiert, 30 min getempert) und Al-2 (3 Tage getempert) war praktisch kein Chlor zu finden.

Dieses Ergebnis zeigt, daß es sinnvoll ist, die Proben länger als 30 min zu reduzieren.

- 5) Die eloxierte Probe Al-1 hat kaum Co im Bulk; das Rückstreupektrum liefert Hinweise, daß sich nicht alles Co auf der Oberfläche befindet, sondern teilweise in der Oxidhaut gelöst oder chemisch gebunden ist.

Jedenfalls scheint hier die Al_2O_3 -Schicht die Diffusion von Co ins dahinterliegende Al zu unterbinden.

6) Die bei 650°C getemperten Proben Al-2 (3 Tage getempert) und Al-3 (10 min getempert) zeigen innerhalb der analysierten Tiefe von 950nm glattes Co-Profil; die Co-Konzentration beträgt ca. 3% mit einem Anstieg (!) in die Tiefe (bei 500nm ca. 5%). Speziell scheint sich in der Oxidhaut nicht mehr, sondern eher etwas weniger Co zu befinden als im Bulk.

Die mit 3-5% hohe Co-Konzentration bis in mindestens 900nm Tiefe kann nicht auf Lösung von Kobalt in Aluminium beruhen, da (s. Kap. IIA) schon die Schmelzpunkt-Sättigungskonzentration nur ca. 100ppm beträgt. Die Co-Atome müssen in dieser Konzentration zwangsläufig zu Clustern agglomerieren (dies wurde bei einer in den Vorversuchen hergestellten ⁵⁷Al Co-Quelle tatsächlich beobachtet), sich an Korngrenzen und Versetzungen anlagern oder Verbindungen mit Aluminium bzw. Sauerstoff eingehen.

Ersichtlich konnte durch die Rückstreuemessungen nicht geklärt werden, welcher Mechanismus dafür verantwortlich ist, daß bei der Herstellung der aktiven Proben durch Diffusion unterhalb des Schmelzpunktes ein Großteil der ⁵⁷Co-Atome in Oberflächennähe bleibt. Möglicherweise erreichen die für Rückstreuemessungen nötigen Co-Konzentrationen die Löslichkeitsgrenze von Co in der Oxidhaut, so daß das überschüssige Co ins Bulk diffundiert. Bei Konzentrationen im ppm-Bereich wäre dies nicht der Fall; nur ein kleiner Co-Anteil würde ins Bulk diffundieren. Aber dies ist Spekulation; die Rückstreuemessungen favorisieren keinen der Begriffe "Löslichkeit" oder "Barriere" eindeutig.

IVC Widerstands- und Mössbauermessungen nach Bestrahlung

Mit den Werten für den Verlagerungswirkungsquerschnitt σ_d aus Tab. III.1 und den experimentell gemessenen Bestrahlungsdosen Φ läßt sich eine dpa-Tabelle erstellen: In Tab. IV.2 ist der Strahlenschaden der untersuchten Probe in Verlagerungen je 1000 Targetatome (10^{-3} dpa) in Abhängigkeit von Φ und der Eindringtiefe d aufgelistet. Man erkennt, daß der Strahlenschaden sehr inhomogen über die Tiefe d verteilt ist; bei $12\mu\text{m}$ Tiefe ist er ca. achtmal so groß wie in der Oberflächenschicht.

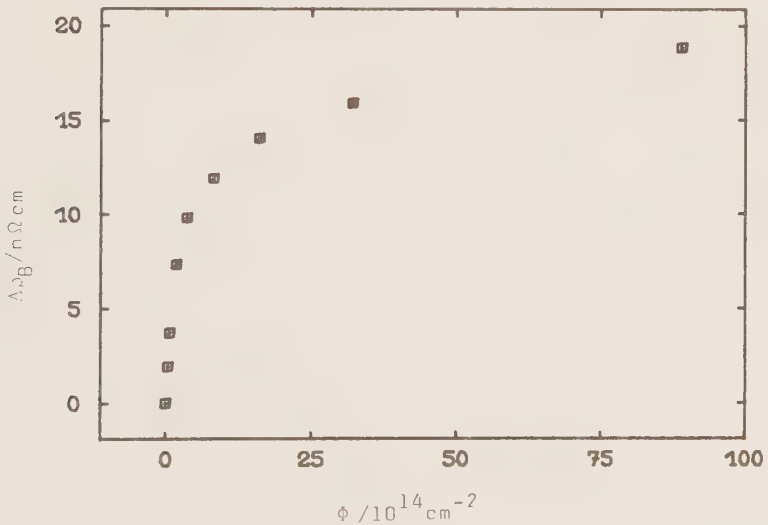


Abb. IV.2: Die bestrahlungsinduzierte Widerstandserhöhung $\Delta \rho_B$ der Probe als Funktion der Dosis Φ

Tab. IV.2: Erzeugte Verlagerungen je 1000 Targetatome
in Abhängigkeit von der Eindringtiefe d
und der Bestrahlungsdosis Φ

Exp.-Nr.		1	2	3	4	5	6	7	8
d μm	$\Phi / 10^{14} \text{ cm}^{-2}$	0,28	0,62	1,75	3,6	8,1*	16	32	89
	σ_d 10^{-18} cm^2								
0	2,00	0,056	0,124	0,350	0,720	1,62	3,20	6,40	17,8
1	2,14	0,060	0,133	0,375	0,770	1,73	3,42	6,85	19,1
2	2,31	0,065	0,143	0,404	0,832	1,87	3,70	7,39	20,6
3	2,52	0,071	0,156	0,441	0,907	2,04	4,03	8,06	22,4
4	2,77	0,078	0,172	0,485	0,997	2,24	4,43	8,86	24,7
5	3,08	0,086	0,191	0,539	1,11	2,49	4,93	9,86	27,4
6	3,47	0,097	0,215	0,607	1,25	2,81	5,55	11,1	30,9
7	3,98	0,111	0,247	0,697	1,43	3,22	6,37	12,7	35,4
8	4,67	0,131	0,290	0,817	1,68	3,78	7,47	14,9	41,6
9	5,68	0,159	0,352	0,994	2,04	4,60	9,09	18,2	50,6
10	7,24	0,203	0,449	1,27	2,61	5,86	11,6	23,2	64,4
11	9,97	0,279	0,618	1,74	3,59	8,08	16,0	31,9	88,7
12	15,7	0,440	0,973	2,75	5,65	12,7	25,1	50,2	140
13	31,5	0,882	1,95	5,51	11,3	25,5	50,4	101	280

* bei dieser Dosis ist F (s. Kap. IVC) maximal.

Alle Meßergebnisse werden also als Überlagerung der Eigenschaften verschieden stark geschädigter Zonen der Probe zustande kommen.

In Abb. IV.2 ist die bestrahlungsinduzierte Widerstandserhöhung $\Delta\rho_B$ der Probe über der Dosis Φ aufgetragen. Sie zeigt das übliche sättigungs-ähnliche Verhalten bei hohen Dosen. Nach /47,48/ gehorcht die Widerstandserhöhung unter der Bedingung, daß die Rekombinationsvolumina v_R der erzeugten Frenkeldefekte nicht überlappen (diese Bedingung ist für $\Phi \lesssim 1,75 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ gut erfüllt), der Gleichung

$$\frac{d\rho_B}{d\Phi} = \sigma_{d,eff} \cdot \rho_{FD} \cdot \left(1 - 2v_R \frac{\Delta\rho_B}{\rho_{FD}}\right) .$$

Dabei ist $\sigma_{d,eff}$ ein effektiver Verlagerungswirkungsquerschnitt; er berücksichtigt nur den Anteil g der ZGAe, die einer spontanen Ausheilung mit LSn entkommen:

$$\sigma_{d,eff} = \sigma_d \cdot g .$$

ρ_{FD} ist der spezifische Widerstand pro Frenkeldefektkonzentration. Nach /47/ wird in Aluminium

$$\rho_{FD} = 0,40 \text{ n}\Omega\text{cm/atom-ppm} \quad \text{angenommen.}$$

Ein Fit der Daten (Abb.IV.3) für $\Phi \lesssim 1,75 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ entsprechend $\Delta\rho_B \lesssim 7,33 \text{ n}\Omega\text{cm}$ ergibt

$$\sigma_{d,eff} = 1,86 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2 .$$

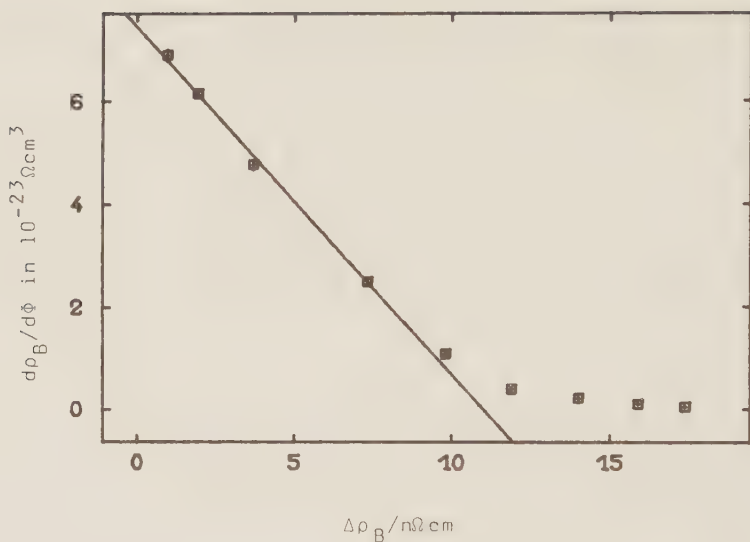


Abb. IV.3: Änderung des Probenwiderstandes mit der Dosis als Funktion der Widerstandserhöhung

Ein Vergleich mit dem in Kap. IIIA unter vereinfachenden Annahmen berechneten Verlagerungswirkungsquerschnitt $\sigma'_d = 2,8 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$ ergibt $g = 0,066$. Folglich entkommt bei einer Bestrahlungstemperatur von 100K nur ca. jedes 15. ZGA der Rekombination mit einer LS.

Nach einer Argumentation von Becker et al. /49/ ist

$$g = 1 - \frac{r_V}{r_C}$$

(r_V : Einfangradius einer LS für ein ZGA oder auch Rekombinationsradius, r_C : Abstand zwischen LS und ZGA unmittelbar nach deren Erzeugung; entspricht ungefähr dem Radius einer Stoßkaskade).

Dies liefert

$$\frac{r_V}{r_C} \approx 0,94$$

Der Rekombinationsradius r_V ist demnach nur wenig kleiner als der Kaskadenradius. Dieses Ergebnis ist gut verträglich mit den in Kap. IVD angestellten Überlegungen zu den Verhältnissen des Kaskadenvolumens zu den Einfangvolumina der LSn und der Co-fremdatome.

Befinden sich ⁵⁷Fe-Atome auf regulären Gitterplätzen des kubischen Wirtsmaterials Aluminium, so ist an ihrem Kernort der elektrische Feldgradient Null /50/. Sie liefern im Mössbauerspektrum die s-Linie, eine Einzellinie, deren Isomerieverschiebung von der Dichte der s-Elektronen am Kernort abhängt;

Haben ⁵⁷Fe-Atome Al-ZGAE eingefangen, so teilen sie mit diesen ihre Gitterplätze; sie werden aus der kubisch-symmetrischen Umgebung an einen Ort mit nichtverschwindendem Feldgradienten gedrängt. Sie tragen im Mössbauerspektrum zu einem (allerdings nicht aufgelösten) Quadrupoldublett bei. Außerdem steigt an ihrem Kernort die s-Elektronendichte. Das Quadrupoldublett (die i-Linie) wird also bei einem Quellenexperiment eine größere Isomerieverschiebung besitzen als die s-Linie.

Abb. IV.4 zeigt die Mössbauerspektren der Probe bei 4,2K, die nach jeder Bestrahlung mit dem bereits erwähnten Pd ⁵⁷Fe-Absorber auf Raumtemperatur aufgenommen wurden. Die Spektren sind in der Abbildung mit von oben nach unten steigender Dosis angeordnet. Das zusätzliche oberste Spektrum ist mit dem in Abb. IV.1 gezeigten, vor Bestrahlung aufgenommenen Spektrum identisch; wegen des unterschiedli-

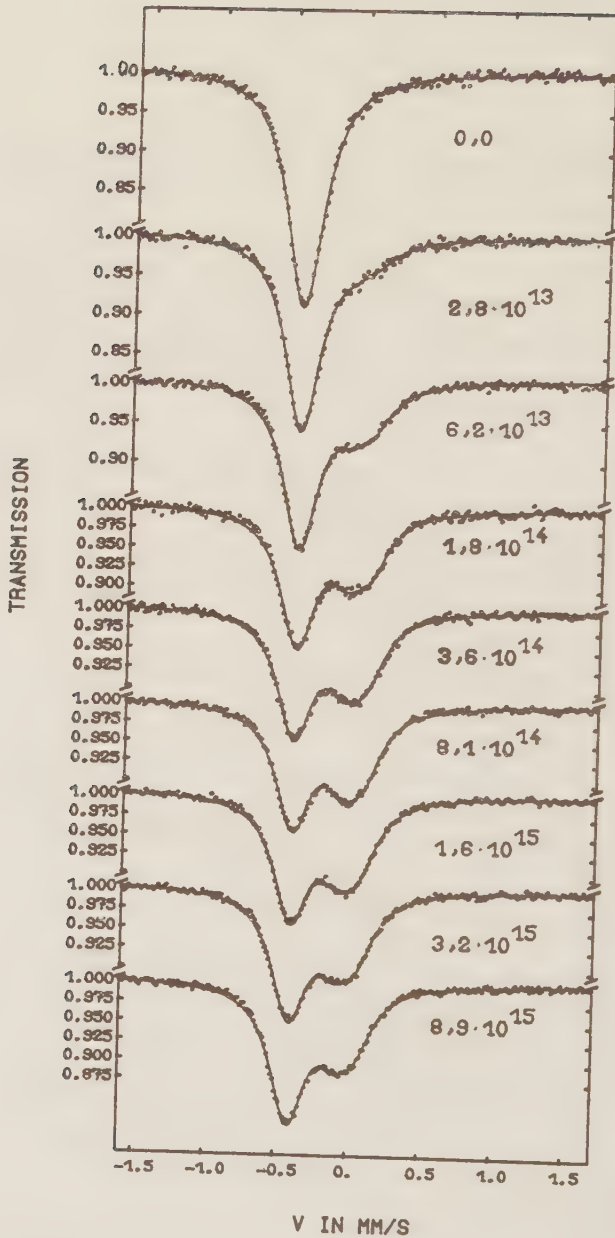


Abb. 1v.4: Mössbauerspektren der Al^{57}Co -Probe bei 4,2K gegen einen Pd^{57}Fe -Absorber bei Raumtemperatur in Abhängigkeit von der Bestrahlungsdosis ϕ in Ionen/cm²

chen Absorbers ist es in Höhe bzw. Fläche nicht mit den übrigen Spektren vergleichbar.

Neben der in allen Spektren vorhandenen s-Linie (s. Tab. IV.1) erkennt man mit steigender Dosis das Anwachsen einer zweiten Linie, und zwar der i-"Linie". Wie erwartet, fangen also in Aluminium (im Gegensatz zu Kupfer, das in Vorversuchen auch bestrahlt wurde) Co-Atome während der Bestrahlung ZGAe ein. Eine v-Linie (Einfang von LSn) wurde nicht beobachtet und ist wegen der Unbeweglichkeit von LSn bei der Bestrahlungstemperatur auch nicht zu erwarten.

Im Zuge der Auswertung wurden alle Mössbauerspektren der bestrahlten Probe mit einer Lorentzlinie (s-Linie) und einem Quadrupoldublett (i-Linie) nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate gefittet. Die 4,2K-Spektren hatten im Rahmen des statistischen Fehlers alle die gleiche Gesamtfläche; dies bestätigt die Aussage von Vogl et al. /2/, daß der Debye-Waller-Faktor (im folgenden DWF abgekürzt) der i-Linie bei 4,2K gleich groß ist wie der der s-Linie, und daß damit bei 4,2K der Flächenanteil der i-Linie an der Gesamtfläche des Spektrums gleich dem Anteil der ⁵⁷Co-Atome ist, die ein oder mehrere ZGAe eingefangen haben. Dieser Anteil wird im folgenden mit F bezeichnet.

Man erwartet, daß mit steigender Dosis immer mehr Co-Atome ZGAe einfangen und F somit ein ähnliches Verhalten zeigt wie der Probenwiderstand. Abb. IV.5 zeigt ein anderes Verhalten: Natürlich steigt f bei kleinen Dosen schnell an; aber es erreicht einen Maximalwert von 0,474 bei $\Phi = 8,1 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ und sinkt mit weiter steigender Dosis deutlich unter diesen Wert ab. Eine analoge Beobachtung wurde in /17/ gemacht; allerdings ist die an sich schlüssige Erklärung der Autoren wegen der unterschiedlichen ⁵⁷Co-Konzentration und Bestrahlungstemperatur nicht auf unsere Verhältnisse anwendbar. In Kap. IVD wird eine Erklärung für unseren Fall versucht.

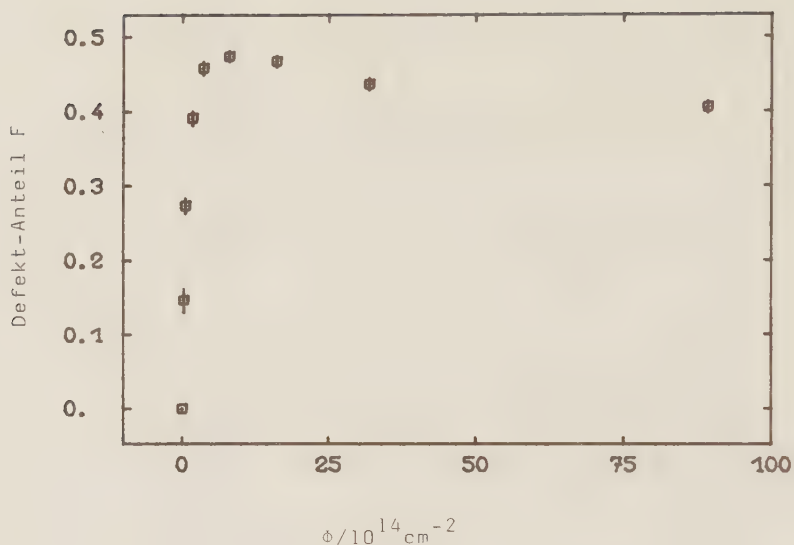


Abb. IV.5: Der Anteil F der ⁵⁷Co-Atome, die ZGAe eingefangen haben, als Funktion der Bestrahlungsdosis Φ

In Kap. IIC wurde berichtet, daß, bedingt durch die Befestigung der Probe unter 45° zur Strahlrichtung, die effektive Dicke der Probe für die Projektile größer ist als ihre Reichweite. Dies führt zwar zu keinen beobachtbaren Dopinge-
effekten, aber es ist denkbar, daß ein Teil der Probe ungeschädigt geblieben ist. Hier soll nun gezeigt werden, wie sich dies auf die Meßergebnisse auswirken würde. Dazu wird angenommen, daß ein Drittel des Probenvolumens ungeschädigt ist.

Bei den Widerstandsmessungen wäre der ungeschädigte Proben-
teil zum geschädigten parallelgeschaltet. Im (unrealisti-

schen) Grenzfall unendlich hohen spezifischen Widerstandes des geschädigten Probenteils würde man den Widerstand des ungeschädigten Probenteils messen; dies würde einen spezifischen Widerstand vortäuschen, der dreimal so groß ist wie der der unbestrahlten Probe. Der gemessene Widerstand müßte echtes Sättigungsverhalten zeigen, also bei großen Dosen gegen einen festen Grenzwert streben. Ein Blick auf Abb. IV.2 zeigt, daß dies zumindest im gemessenen Dosisbereich nicht der Fall ist. Offenbar ist der weitaus größte Teil der Probe strahlengeschädigt worden.

Im Mössbauerspektrum bei 4,2K entfielen ein konstanter Anteil von einem Drittel der Gesamtfläche als Sockelanteil auf die s-Linie. Zur Korrektur der F-Werte müßte dieses Drittel von der Gesamtfläche subtrahiert werden; dies würde zu F-Werten führen, die um den Faktor 1,5 größer sind als die gemessenen. Der Maximalwert würde sich damit auf 0,71 erhöhen. An der qualitativen Dosisabhängigkeit von F (Absinken nach Durchlaufen eines Maximums) würde sich aber nichts ändern.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, daß durch eine eventuelle unvollständige Strahlenschädigung der Probe zwar die quantitativen Meßergebnisse verfälscht würden, daß sich aber im qualitativen Verhalten von Probenwiderstand und Defektanteil F und damit an den wesentlichen Aussagen dieser Arbeit nichts ändern würde.

Nach der Bestrahlung mit $\Phi = 3,2 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ wurde mit zusätzlichen Mössbauermessungen bei Temperaturen bis 70K die Temperaturabhängigkeit der Debye-Waller-Faktoren von s- und i-Linie untersucht. Die Debye-Waller-Faktoren bei der Temperatur T wurden gemäß

$$\text{DWF}(T) = \frac{\text{DWF}(4,2\text{K})}{A(4,2\text{K})} \cdot A(T)$$

berechnet. Dabei bezeichnet A die Fläche unter der jeweiligen Linie. Der DWF bei 4,2K ist in /2/ fälschlicherweise mit 0,88 angegeben. Nach Mansel /51/ ist der richtige Wert 0,889.

In Tabelle IV.3 und Abb. IV.6 sind die für die s- und die i-Linie ermittelten Debye-Waller-Faktoren als Funktion der Temperatur angegeben.

Tab. IV.3: Debye-Waller-Faktoren der s- und der i-Linie als Funktion der Temperatur

T/K	4,2	25	35	50	70
s-DWF	0,889(15)	0,882(18)	0,882(17)	0,863(17)	0,850(20)
i-DWF	0,889(23)	0,861(28)	0,780(26)	0,760(26)	0,656(27)

Laut /2,50/ ist der DWF in kubischen Kristallen

$$\text{DWF}(T) = \exp \left(- \frac{2E_R}{\pi} \int_0^{\infty} \frac{D(\omega)}{\omega} \left(\frac{1}{\exp(\frac{\hbar\omega}{kT}) - 1} + \frac{1}{2} \right) d\omega \right) .$$

$E_R = 1,953 \text{ MeV}$ ist die Rückstoßenergie, die ein ⁵⁷Fe-Kern bei der Emission des Mössbauerquants erhält, k die Boltzmannkonstante, und D(ω) entspricht der Zustandsdichte des Aluminiumgitters; da das Mössbaueratom ein Fremdatom im Gitter ist, können sicher nicht alle Gitterschwingungen daran ankoppeln, und D(ω) muß anders aussehen als die reine Aluminium-Zustandsdichte. Trotzdem wurde versucht, D(ω) für die s-Linie durch ein Debye-Modell anzunähern:

$$D_D(\omega) = \begin{cases} 3 \left(\frac{\pi}{k\theta} \right)^3 \omega^2 & \text{für } \omega \leq \frac{k\theta}{\pi} \quad (\theta: \text{Debye-Temperatur}) \\ 0 & \omega > \frac{k\theta}{\pi} \quad \text{und} \end{cases}$$

$$\text{DWF}_D(T) = \exp \left(- \frac{3}{2} \frac{E_R}{k\theta} \left(1 + 4 \left(\frac{T}{\theta} \right)^2 \int_0^{\theta/T} \frac{x}{\exp(x) - 1} dx \right) \right) .$$

Das Integral im Exponenten wurde numerisch berechnet.
Ein Fit des s-Linien DWFs gibt die Verhältnisse gut wieder;
er liefert $\Theta = (287 \pm 15) \text{K}$ in guter Übereinstimmung mit /2/.

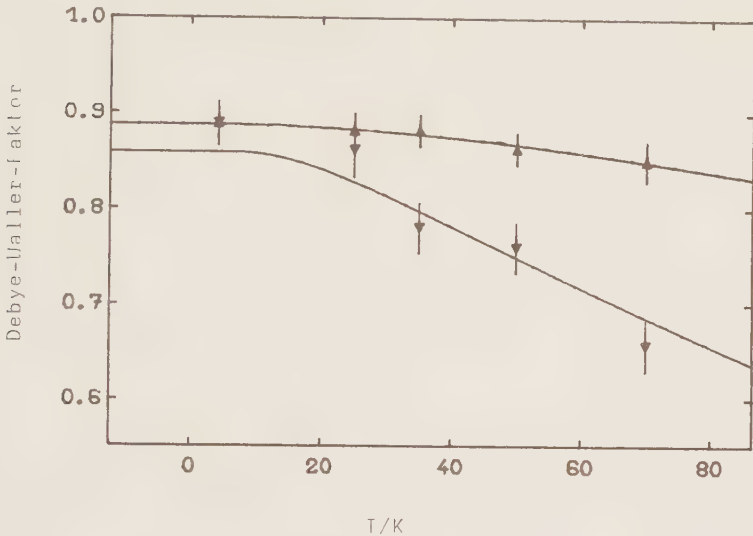


Abb. IV.6: Debye-Waller-Faktoren der s(▲)- und der i(▼)-Linie als Funktion der Temperatur. Die durchgezogenen Kurven sind Fits mit einem Debyemodell (s-Linie) und einem Einsteinmodell mit 2 Frequenzen (i-Linie).

Das Debye-Modell versagt bei dem Versuch, auch den i-Linien-DWF zu fitten. Dies ist nicht erstaunlich, da durch den Einfang von ZGAen die Symmetrie der Umgebung eines Mössbaueratoms erniedrigt wird und ihm deshalb Freiheitsgrade verlorengehen. Es wird also vermutlich lokalisierte

Schwingungen ausführen, die sich mit einem Einsteinmodell beschreiben lassen. Da aber ein einfaches Einsteinmodell den i-Linien-DWF auch nicht beschreibt, wurde ein 2-Frequenzen-Modell versucht:

$$D_E(\omega) = g(\omega_1) \cdot \delta(\omega - \omega_1) + (1 - g(\omega_1)) \cdot \delta(\omega - \omega_2)$$

und damit

$$\begin{aligned} DWF_E(T) = \exp\left(-\frac{2E_R}{\hbar} \left(\frac{g(\omega_1)}{\omega_1} \left(\frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar\omega_1}{kT}\right) - 1} + \frac{1}{2} \right) + \right. \right. \\ \left. \left. + \frac{1 - g(\omega_1)}{\omega_2} \left(\frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar\omega_2}{kT}\right) - 1} + \frac{1}{2} \right) \right) \right) ; \end{aligned}$$

ω_1 und ω_2 sind die beiden Einsteinfrequenzen, $g(\omega_1)$ der Gewichtungsfaktor für ω_1 ; der Gewichtungsfaktor für ω_2 ist dann $1 - g(\omega_1)$.

Da ein Fit des i-Linien-DWF mit diesem Modell nur schlecht konvergierte, wurden analog $/2/$ die Frequenzen

$$\omega_1 = 6,5 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1} \quad \text{und} \quad \omega_2 = 6,1 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}$$

festgehalten. Dadurch verliert der Fit an Aussagekraft, aber er beschreibt die Daten relativ gut. Als Gewichtungsfaktor für ω_1 ergab sich

$$g(\omega_1) = 0,25 \pm 0,02$$

Wenn ω_1 und ω_2 auch nicht frei angepaßt sind, so sind sie doch mit Berechnungen des Frequenzspektrums von reinem Aluminium und von Cu-ZGAs verträglich: Gilat und Nicklow $/52/$ berechneten das Frequenzspektrum von Al aus Neutronenbeu-

gungsdaten und fanden eine Maximalfrequenz $\omega = 6,1 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}$. Scholz, Lehmann und Dederichs /53,54/ führten Computersimulationen des Schwingungsverhaltens von Cu-ZGAen durch und fanden einerseits lokalisierte Schwingungen mit einer Frequenz von ungefähr $1,3 \omega_{\text{max}}$ und andererseits niederfrequente resonante Moden mit ca. $0,15 \omega_{\text{max}}$.

IVD Dosisabhängigkeit des Defektanteils F im Mössbauerspektrum

Die Strahlenschadenrechnungen (Kap. III) ergeben eine freie Weglänge der $25\text{MeV } O^{4+}$ -Ionen von $\bar{\lambda} = 2500\text{\AA}$ am Anfang ihres Weges durch die Probe; die freie Weglänge wird mit der Eindringtiefe immer kleiner und erreicht nach $13\mu\text{m}$ Tiefe den Wert $\bar{\lambda} = 280\text{\AA}$.

Nach Computersimulationen von Gibson et al. /55/ ist in einem ähnlichen Fall wie dem unseren (nämlich Kupfer, das ebenso wie Aluminium kubisch-flächenzentriert ist) bei einer Energie des primären Rückstoßatoms von 400eV der Durchmesser einer Stoßkaskade ca. 10 Nächste-Nachbar-Abstände, bei Al mit einem Nächsten-Nachbar-Abstand $a = 2,86\text{\AA}$ also ca. $30\text{\AA}$. Also kann man sich die Strahlenschädigung des Al-Gitters durch ein 25MeV -Sauerstoffion folgendermaßen vorstellen: Das Ion läuft auf einer relativ geradlinigen Bahn durch die Probe, da wegen des Rutherford-Wirkungsquerschnittes kleine Energieüberträge und damit kleine Ablenkwinkel stark bevorzugt sind. Auf seinem Weg erzeugt es eine anfangs dünne, dann immer dichter werdende Kette von Kaskaden, d. h. geschädigten Volumenbereichen. Diese sind selbst im Endstück der Bahn noch klar getrennt und überlappen nicht, da $\bar{\lambda}(13\mu\text{m}) = 280\text{\AA}$ immer noch groß ist gegen den Kaskadendurchmesser von $30\text{\AA}$.

Im Vergleich dazu beträgt bei der ^{57}Co -Konzentration von $1,3\text{atom-ppm}$ der mittlere Abstand der ^{57}Co -Atome $a \cdot (1,3 \cdot 10^{-6})^{-1/3} \approx 92 \cdot a \approx 260\text{\AA}$.

Wir schätzen nun anhand Tab. III.1 das Gesamtvolumen aller durch ein einzelnes O-Ion erzeugten Kaskaden ab:

Ein O-Ion gibt seine Energie in $\mu \approx 150$ Stößen in der Probe ab; dies läßt sich aus den $\bar{\lambda}$ -Werten berechnen. Dabei er-

zeugt es ca. 560 Frenkelpaare, wie sich aus den Werten für $\bar{\lambda}$ und $\bar{v}$ ergibt; eine Kaskade enthält im Mittel knapp 4 Frenkelpaare.

Das Volumen V_C einer Kaskade beträgt ca. $(30\text{\AA})^3$; ein O-Ion schädigt damit ein Volumen von

$$\mu V_C = 150 \cdot (30\text{\AA})^3 = 4 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^3.$$

Die Anzahl m der Stoßkaskaden in der Probe ist gegeben durch die Zahl μ der von einem O-Ion erzeugten Kaskaden und die Zahl $\Phi \cdot S_P$ der eingestrahlten O-Ionen (S_P : bestrahlte Probenfläche):

$$m = \mu \cdot \Phi \cdot S_P.$$

Das gesamte durch die O-Ionen-Dosis Φ erzeugte Kaskadenvolumen ist dann $m \cdot V_C$.

Setzen wir dieses Volumen zum Volumen V_P der Probe ins Verhältnis:

$$x := m \cdot \frac{V_C}{V_P},$$

so ist nach Böning et al. /56/ der Anteil W_n des Probenolumens, der n -fach mit Kaskaden überdeckt ist, gegeben durch

$$W_n = \frac{1}{n!} \cdot x^n \cdot \exp(-x).$$

$W_0 = \exp(-x)$ ist dabei der ungeschädigte Anteil des Probenolumens. In unserem Fall ist mit $\mu V_C = 4 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^3$, $S_P = 1 \text{ cm}^2$ und $V_P = 1 \text{ cm} \cdot 1,3 \cdot 10^{-3} \text{ cm}$

$$x = \Phi \cdot 3 \cdot 10^{-15} \text{ cm}^2.$$

In Tab. IV.4 und Abb. IV.7 sind in Abhängigkeit von der Dosis ϕ und der daraus berechneten Größe x die Anteile W_0 bis W_3 (in Abb. IV.7 nur W_1 bis W_3) und zum Vergleich der aus den Mössbauerspektren ermittelte Defektanteil F (Anteil der ^{57}Co -Atome, die ZGAe eingefangen haben, an der Gesamtzahl der ^{57}Co -Atome) und die bestrahlungsinduzierte Widerstandserhöhung $\Delta\rho_B$ aufgetragen. $\Delta\rho_B$ ist in Abb. IV.7 zu Vergleichszwecken auf den Maximalwert von F normiert, also:

$$\Delta\rho'_B(\phi) := \Delta\rho_B(\phi) \cdot \frac{F(\phi=8,1 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2})}{\Delta\rho_B(\phi=8,1 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2})}.$$

In Abb. IV.7 erkennt man zunächst, daß $\Delta\rho'_B$ bei kleinen Dosen ($\phi \leq 3,6 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$) in guter Näherung gemeinsam mit W_1 verläuft (Daß die beiden Kurven zufällig zusammenfallen, liegt nur an der gewählten Normierung von $\Delta\rho'_B$). Das ist nicht weiter erstaunlich, da in diesem Bereich $W_1 > W_2 > W_3$ ist und somit der Hauptanteil des geschädigten Probenvolumens nur einfach geschädigt ist; die Widerstandszunahme rührt im wesentlichen von der Zunahme der Zahl isolierter Frenkeldefekte her. Bei höheren Dosen ($\phi > 8,1 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$) überwiegt bereits die Mehrfach-Überdeckung des Probenvolumens mit Kaskaden. Dies sollte zwei Effekte zur Folge haben: die Bildung neuer Defektkonfigurationen, vor allem Defekt-Agglomeration, und "Radiation annealing", also das bestrahlungsinduzierte Ausheilen von Defekten. Radiation annealing führt, unabhängig vom Mechanismus, zu einer Abnahme der Steigung der dosisabhängigen Widerstandskurve. Wie sich die Umkonfiguration von Defekten auf den Widerstand auswirkt, ist schwer abzuschätzen: Es wird keine Änderung des Widerstandes erwartet, wenn ZGAe zu Clustern agglomerieren /57-59/. Wird ein ZGA von einem Fremdatom eingefangen,

Tab. IV.4: Ungeschädigter (W_0) bzw. geschädigte (W_1 bis W_3)
Probenanteile, Defektanteil F und Widerstandserhöhung
 $\Delta\rho_B$ bzw. $\Delta\rho'_B$ (Definition im Text) als Funktion der
Dosis Φ

$\Phi/10^{14} \text{ cm}^{-2}$ x	0,28	0,62	1,75	3,6	8,1	16	32	89
	0,085	0,186	0,525	1,086	2,391	4,77	9,57	26,8
W_0	0,918	0,831	0,592	0,338	0,092	0,008	$<10^{-3}$	$<10^{-3}$
W_1	0,078	0,154	0,311	0,367	0,219	0,040	0,001	$<10^{-3}$
W_2	0,003	0,014	0,082	0,199	0,262	0,096	0,003	$<10^{-3}$
W_3	$<10^{-3}$	0,001	0,014	0,072	0,209	0,153	0,010	$<10^{-3}$
F	0,147	0,274	0,391	0,458	0,474	0,468	0,437	0,406
$\Delta\rho_B / n\Omega\text{cm}$	1,93	3,71	7,33	9,80	11,9	14,0	15,9	18,9
$\Delta\rho'_B$	0,077	0,148	0,292	0,391	0,474	0,559	0,633	0,751

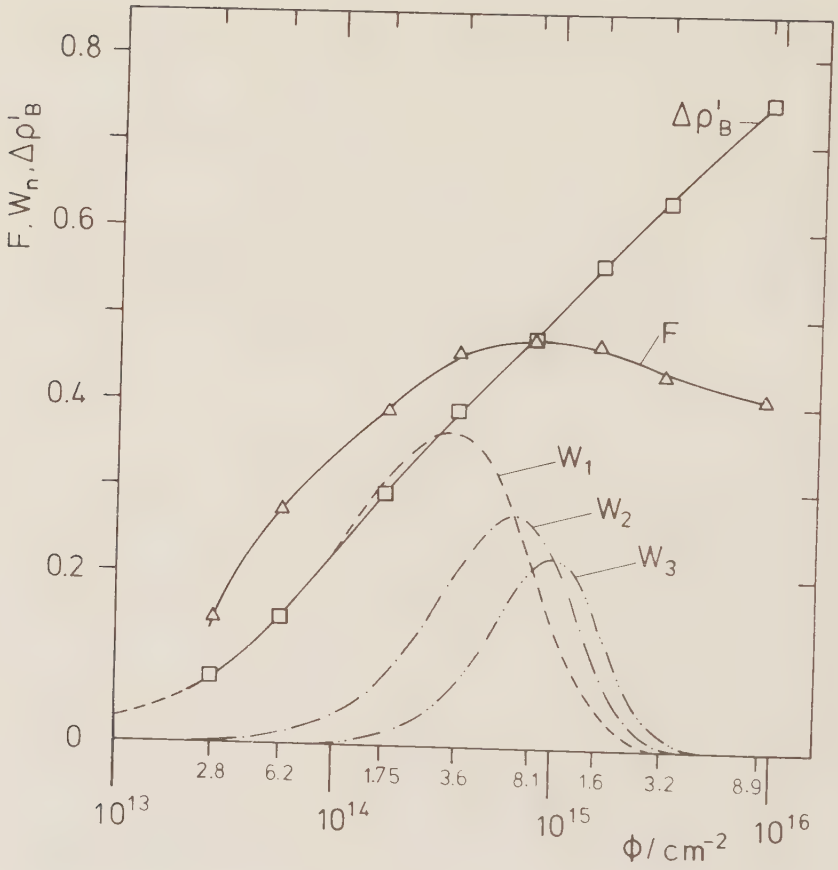


Abb. IV.7: Defektanteil F , normierte bestrahlungsinduzierte Widerstandserhöhung $\Delta\rho'_B$ und n -fach mit Defektkaskaden überdeckte Probenvolumenanteile W_n als Funktion der Bestrahlungsdosis ϕ

so kann sich sein Widerstandsbeitrag ändern /60,61/; im Fall eines Co-Fremdatoms verkleinert er sich um ca. 25% /62/.

Insgesamt läßt sich aber die funktionale Abhängigkeit des Widerstandes von der Bestrahlungsdosis nicht angeben. Daß in unserem Fall der Widerstand in guter Näherung linear mit dem Logarithmus der Dosis wächst, ist schon allein deshalb Zufall, weil der Strahlenschaden inhomogen über die Proben-
dicke verläuft und der Gesamtwiderstand sich aus einer "Parallelschaltung" verschieden stark geschädigter Zonen ergibt.

Von Interesse ist in Abb. IV.7 vor allem der Verlauf des Defektanteils F im Vergleich zum einfach geschädigten Volumenanteil W der Probe. Dazu sollen nochmals drei experimentelle Voraussetzungen in Erinnerung gerufen werden:

- Die Mössbaueratome sind statistisch auf Gitterplätzen in der Probe verteilt (s. Kap. IVA).
- Bei der Bestrahlungstemperatur von 100K sind LSn unbeweglich, und ZGAe können frei durchs Gitter diffundieren.
- Da das Mössbauerspektrum nicht unterscheiden kann, ob ein ⁵⁷Co-Atom ein oder mehrere ZGAe eingefangen hat, ist der Defektanteil F unempfindlich auf die Größe eingefangener ZGA-Cluster.

Trifft ein Sauerstoffion auf ein Al-Atom in der Probe, so wird dieses eine kleine Kaskade mit im Mittel 3 bis 4 ZGAen und LSn erzeugen. Die LSn befinden sich /55/ in der Gegend des ursprünglich angestoßenen Al-Atoms, während die ZGAe mehr am Rand der Kaskade entstehen und von dort aus durchs Gitter diffundieren. Dabei rekombinieren sie mit hoher Wahrscheinlichkeit spontan mit einer LS (s. Kap. IVC); nur ca. jedes 15. ZGA entkommt der spontanen Rekombination und

kann z. B. von einem ^{57}Co -Fremdatom eingefangen werden. Ein Maß für die Einfangwahrscheinlichkeit eines ZGAs an einem ^{57}Co -Atom ist der Einfangradius r_t , den das ^{57}Co -Fremdatom für Al-ZGAs besitzt. Ist r_t klein (gegen den Rekombinationsradius r_v oder gegen die Einfangradien anderer Fremdatome), so fangen nur wenige ^{57}Co -Atome ein ZGA ein, und F steigt nur langsam im Vergleich zu W_1 mit der Dosis an.

In unserem Fall liegt F aber immer über W_1 ; der Anteil der ^{57}Co -Atome, die mindestens ein ZGA eingefangen haben, an der Gesamtzahl aller im Probenvolumen statistisch verteilten ^{57}Co -Atome ist also größer als der Anteil W_1 des einfach von Kaskaden überdeckten Volumens am gesamten Probenvolumen. Folglich muß r_t größer als der mittlere Radius r_c einer Kaskade sein.

Diese Argumentation hat noch eine Schwachstelle: die Lage der mit Kaskaden überdeckten Volumenanteile W_n und insbesondere von W_1 auf der Dosis-Achse hängt direkt vom oben eingeführten Kaskadenvolumen V_c ab; für dieses konnte nur eine ungenaue Abschätzung angegeben werden. Nimmt man aber an, daß bereits mit zweifacher Überdeckung durch Kaskaden Radiation annealing einsetzt, so sollte das Maximum von F ungefähr in der Gegend des Maximums von W_1 liegen. Dies ist in etwa der Fall; die Funktionen W_n sollten eher bei etwas höheren Dosen liegen, was einem kleineren Kaskadenvolumen V_c entspräche als dem abgeschätzten.

Allerdings ist die Höhe der Maxima von W_n unabhängig von V_c ; es ist immer

$$W_{1\max} = \exp(-1) \approx 0,368.$$

$F_{\max}$ liegt mit 0,474 um einen Faktor von ca. 1,3 höher. Um

mindestens diesen Faktor muß das Einfangvolumen $V_t \propto r_t^3$ der ^{57}Co -Atome für ZGAe bei 100K größer sein als das Kaskadenvolumen V_c . Das Volumenverhältnis sollte eher größer sein, da im Maximum von W_1 der zweifach mit Kaskaden überdeckte Volumenanteil W_2 schon halb so groß ist wie W_1 ; F ist also bereits durch Radiation annealing beeinflusst und damit kleiner, als es dem Verlauf von W_1 entspricht.

Bartels et al. /62/ finden aufgrund der Widerstandserhöhung bei Elektronenbestrahlung von Al^{57}Co ein Verhältnis $r_t/r_c \approx 2$ bei 100K; der Rekombinationsradius r_c wird mit $3,5$ Gitterkonstanten /63/, also $10\text{\AA}$, veranschlagt. Dies führt auf $r_t = 20\text{\AA}$ und damit auf ein Verhältnis

$$V_t/V_c = (r_t/r_c)^3 \approx 2,4 ; \quad (r_c = 15\text{\AA}).$$

Dagegen ist der oben abgeschätzte Wert von $1,3$ zu klein; er bildet aber ohnehin eine untere Grenze für V_t/V_c , so daß unsere grobe Abschätzung verträglich mit obiger Veröffentlichung erscheint.

Für das Radiation annealing sind drei Mechanismen denkbar:

- 1) Es ist möglich, daß eine neu entstandene und der spontanen Rekombination entkommene LS innerhalb ihres Einfangvolumens ein bereits früher gebildetes ZGA oder ZGA-Cluster vorfindet. Diese LS, die bei ungeschädigtem Gitter überleben würde, heilt aus. Die Wahrscheinlichkeit dafür ist umso größer, je höher die ZGA-Konzentration im Gitter ist; sie steigt also mit der Bestrahlungsdosis.
- 2) Ein Projektil kann durch Stöße "Spikes" verursachen, also lokal und zeitlich eng begrenzte Gebiete hoher Energiedichte, innerhalb derer Fehlstellen kurzzeitig beweglich werden und ausheilen können. Spikes können bei Schwerionen- und Neutronenbestrahlung auftreten, nicht aber bei Elektronenbestrahlung wegen der geringen Energieüberträge.

- 3) Befinden sich im Gitter ZGAe etwas außerhalb vom Rekombinationsradius von LSn , so genügt die Übertragung eines geringen Energiebetrages, um das ZGA zum Ausheilen mit der LS zu bringen. Radiation annealing durch solche "unterschwelligten Stöße" tritt bei allen Projektilsorten auf; die Wahrscheinlichkeit dafür steigt mit steigender Frenkeldefektkonzentration und damit wieder mit der Bestrahlungsdosis. Es dürfte jedoch in unserem Fall zumindest im Verhalten des Probenwiderstandes keine Rolle spielen, da bei der Bestrahlungstemperatur die Al -ZGAe ohnehin beweglich sind.

Alle drei Mechanismen führen zum Abflachen der Widerstands-Dosis-Kurve bei genügend hohen Dosen. Sie lassen Sättigungsverhalten erwarten, aber kein Durchlaufen eines Maximums mit anschließendem Abfall; tatsächlich wurde noch nie eine Widerstands-Dosis-Kurve gemessen, die ein Maximum durchlief. Für den erst zweimal, nämlich in /17/ und in der vorliegenden Arbeit, gemessenen Abfall des Defektanteils F im Mössbauerspektrum muß ein anderer Mechanismus verantwortlich sein.

Zwei Möglichkeiten kommen dafür in Frage:

- 1) Wenn ZGA-Cluster eine gewisse Größe erreicht haben, ordnen sie sich zu ⁵⁷Co-Versetzungsringen um /64/. Befand sich im Cluster ein ⁵⁷Co-Fremdatom, so ist es möglich, daß es sich nach der Umordnung in ungestörter Umgebung befindet. Der Abfall von F käme also durch Umkonfiguration von großen ZGA-Clustern zustande.
- 2) Unterschwellige Stöße spielen zwar bei uns im Widerstandsverhalten keine Rolle; sie können aber von Bedeutung sein, wenn es um ZGAe geht, die von ⁵⁷Co-Atomen eingefangen wurden. Befindet sich in der Nähe einer solchen

Konfiguration eine LS, so kann es zur Rekombination durch unterschwellige Stöße kommen. Das ⁵⁷Co-Atom, das sich vorher in einer verzerrten Umgebung befand und damit zum Defektanteil F im Mössbauerspektrum beitrug, befindet sich nachher auf einem Gitterplatz in ungestörter Nachbarschaft und kann zur substitutionellen Linie im Mössbauerspektrum beitragen.

Mit diesem Mechanismus kann man bisher nur ein Sättigungsverhalten von F, nicht aber das Durchlaufen eines echten Maximums erklären. Dafür ist eine weitere, allerdings nicht unrealistische Annahme analog /17/ notwendig:

Das Rekombinationsvolumen eines ZGAs in einem ZGA-Cluster muß umso kleiner sein, je größer der Cluster ist. Hinweise für die Richtigkeit dieser Annahme liefern Widerstandsmessungen nach Elektronen- /65/ und Schwerionenbestrahlung /57/.

Damit ergibt sich für das Maximum von F folgende Erklärung: Bei niedriger Dosis werden ZGAe von ⁵⁷Co-Atomen eingefangen; F steigt an. Mit weiter steigender Dosis werden erstens ⁵⁷Co-Atome, die bereits ZGAe eingefangen haben, noch zusätzliche ZGAe einfangen, die aber nicht mehr zur Erhöhung von F beitragen; zweitens werden noch einige substitutionelle ⁵⁷Co-Atome einzelne ZGAe einfangen, die damit F etwas erhöhen; drittens wird bei hohen Dosen die LS-Konzentration genügend hoch sein, daß die LSn mit ausreichender Wahrscheinlichkeit über unterschwellige Stöße mit ZGAen rekombinieren, die von ⁵⁷Co-Atomen eingefangen sind. Wegen des kleineren Rekombinationsvolumens der ZGAe in Clustern werden LSn nur mit kleiner Wahrscheinlichkeit mit ZGAen aus Clustern rekombinieren; dies erniedrigt F nicht. Dagegen werden sie mit großer Wahrscheinlichkeit mit eingefangenen Einzel-ZGAen rekombinieren; dadurch wird F erniedrigt.

In der Probe wird ⁵⁷im Endeffekt also bei hohen Dosen die Konzentration der ⁵⁷Co-Atome mit Einzel-ZGAen oder kleinen ZGA-Clustern abnehmen und die Konzentration der ⁵⁷Co-Atome mit großen Clustern zunehmen, und zwar so, daß die Konzentration der ⁵⁷Co-Atome, die überhaupt ein oder mehrere ZGAe eingefangen haben, abnimmt; dadurch sinkt F bei hohen Dosen. Die Größe der eingefangenen Cluster nimmt zwar zu; dies hat aber auf F keinen Einfluß.

V Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde ein durch Schmelzdiffusion mit $1,3 \text{ atom-ppm } ^{57}\text{Co}$ dotiertes Al-Target bei 100K in mehreren Schritten mit steigender Dosis bestrahlt. Als Projektilen wurden Sauerstoffionen mit 25 MeV Energie verwendet. Nach jeder Bestrahlung wurde ein Mössbauerspektrum aufgenommen und der Probenwiderstand gemessen. In den Mössbauerspektren tauchte mit wachsender Bestrahlungsdosis eine zusätzliche Linie, die "i-Linie", auf, die auf den Einfang von freidurchs Gitter diffundierenden Zwischengitteratomen durch die ^{57}Co -Fremdatome hinweist.

Nach Bestrahlung mit einer Dosis von $3,2 \cdot 10^{15} \text{ Ionen/cm}^2$ wurden die Debye-Waller-Faktoren der substitutionellen und der i-Linie bis 70K untersucht. Der Debye-Waller-Faktor der substitutionellen Linie läßt sich gut mit einem Debye-Modell beschreiben, während der der i-Linie noch am ehesten durch ein Einsteinmodell mit zwei Frequenzen wiedergegeben wird; die beiden Frequenzen entsprechen in etwa den bekannten Schwingungsmoden einer Zwischengitteratom-Hantel in Aluminium.

Aus dem Flächenanteil der i-Linie konnte der Anteil F der ^{57}Co -Atome bestimmt werden, die Zwischengitteratome eingefangen hatten; er durchläuft mit steigender Dosis ein Maximum, um nach weiterer Bestrahlung wieder deutlich unter den Maximalwert abzusinken. Dieses Verhalten wird mit dem Zusammenwirken von drei Faktoren erklärt:

- 1) Bei der Bestrahlungstemperatur von 100K sind sowohl Leerstellen als auch die an den ^{57}Co -Fremdatomen eingefangenen Zwischengitteratome unbeweglich und können nicht rekombinieren. Sie sammeln sich also mit steigender Bestrahlungsdosis in der Probe an.
- 2) Sie können nur dann rekombinieren, wenn sie von einem

Projektil ausreichend Energie übertragen bekommen, um den Abstand voneinander überwinden zu können; dies kann durch unterschwellige Stöße geschehen.

- 3) Auch dann ist ein Absinken der Anzahl der ^{57}Co -Atome, die Zwischengitteratome eingefangen haben, nur möglich, wenn eine Leerstelle leichter mit einem eingefangenen Einzel-Zwischengitteratom rekombiniert als mit einem Zwischengitteratom aus einem eingefangenen Cluster, oder anders ausgedrückt: wenn der Einfangradius einer Leerstelle für ein Zwischengitteratom mit der Größe des Clusters, in dem sich dieses befindet, sinkt.

Diese drei Faktoren 57 führen dazu, daß nach genügend hoher Dosis die Zahl der ^{57}Co -Atome, die mindestens ein Zwischengitteratom eingefangen haben, sinkt, obwohl nach Ausweis der Widerstandsmessungen die Zahl der erzeugten und damit auch der eingefangenen Zwischengitteratome weiter steigt; d. h. die durchschnittliche Clustergröße muß steigen.

Der erste noch vage Hinweis auf die Möglichkeit eines Absinkens von F bei hohen Dosen ist in /6/ zu finden; dort wurde nach Bestrahlung von Al^{57}Co mit $7,3 \cdot 10^{18}$ Reaktorneutronen pro cm^2 bei den anschließenden Ausheilmessungen ein leichter Abfall von F in der Ausheilstufe II beobachtet, während bei niedrigeren Dosen F in Stufe II noch anstieg. Neutronenbestrahlung bei 100K könnte, falls sie mit vertretbarem experimentellem Aufwand möglich ist, interessante Zusatzinformation liefern.

Ebenso wäre eine Wiederaufnahme der Mössbauermessungen mit in Al rückstoßimplantiertem coulomb-angeregtem ^{57}Fe /3,4/ am Erlanger Tandembeschleuniger sinnvoll; eine Untersuchung der Temperaturabhängigkeit der dort gefundenen Defektlinie könnte Aufschluß über das Zeitverhalten der $^{57}\text{Fe}/\text{Al}$ -Konfiguration liefern. Im qualitativ wie quantitativ gut verstandenen System AlCo sind also durchaus noch einige Fragen offen.

VI Literaturverzeichnis

- /1/ W. Mansel, G. Vogl, and W. Koch,
Phys. Rev. Lett. 31(1973)359
- /2/ G. Vogl, W. Mansel, and W. Vogl, J. Phys. F 4(1974)2321
- /3/ D. Seyboth, U. Volland, B. Brzoska, J. Baumann, F.
Sontheimer, and K. Wimmer, J. de Phys. 12(1974)C6-305
- /4/ U. Volland, Diplomarbeit, Erlangen 1974
- /5/ G. Vogl, W. Mansel, and P. H. Dederichs,
Phys. Rev. Lett. 36 1976 1497
- /6/ W. Mansel and G. Vogl, J. Phys. F 7:1977,253
- /7/ W. Mansel, H. Meyer, and G. Vogl, Rad. Eff. 35(1978)69
- /8/ G. Vogl, W. Mansel, W. Petry, and V. Gröger,
Hyp. Int. 4(1978)681
- /9/ J. B. Ward, Scripta Met. 9(1975)1211
- /10/ H. Ichinose, K. Sassa, Y. Ishida, and M. Kato,
Scripta Met. 11(1977)539; Phil. Mag. 36(1977)1367
- /11/ K. Sassa, H. Goto, Y. Ishida, and M. Kato,
Scr. met. 11(1977)1029
- /12/ S. Umeyama, K. Sassa, M. Taniwaki, Y. Ishida, and
H. Yoshida, Hyp. Int. 10(1981)705
- /13/ W. Petry, G. Vogl, and W. Mansel,
Phys. Rev. Lett.45(1980)1862
- /14/ W. Petry, Dissertation, Freie Universität Berlin 1981
- /15/ W. Petry and G. Vogl, Z. Phys. B 45(1982)207

- /16/ W. Petry, G. Vogl, and W. Mansel, Z. Phys. B 46(1982)319
- /17/ E. Verbiest and H. Pattyn, Phys. Rev. B 25(1982)5097
- /18/ M. Hansen, K.L. Anderko: Constitution of Binary Alloys, McGraw Hill New York 1958
- /19/ G. Erdélyi, D.L. Beke, F.J. Kedves, I. Gödény, Phil. Mag. B 38(1978)445
- /20/ C. Nölscher, K. Brenner, R. Knauf, and W. Schmidt, Proceedings of the "6th International Conference on Ion Beam Analysis", Phoenix, May 1983, Nucl. Instr. and Methods, in press
P. Müller, Proceedings of the Conference on "Nuclear Physics Methods in Materials Research", Darmstadt, Sept. 1980, ed. by K. Bethge, H. Baumann, H. Jex, and F. Rauch, Vieweg, Braunschweig 1980
- /21/ G. Zirkel and C. Little, J. irr. res. 25(1979)21
- /22/ L. C. Northcliffe and R. F. Schilling, Nucl. Data Tables A7(1970)233
- /23/ B. Brzoska, Diplomarbeit, Erlangen 1971
- /24/ S. Klaumünzer, G. Schumacher, S. Rentzsch, G. Vogl, L. Söldner, and H. Bieger, Acta metall. 30(1982)1493
- /25/ J. Bieger, Dissertation, Erlangen 1983
- /26/ G. H. Kinchin and R. S. Pease, Repts. Prog. Phys 18(1955)1
- /27/ G. J. Dienes, G. H. Vineyard: "Radiation Effects in Solids", Interscience New York 1957
- /28/ P. Vajda, Rev. Mod. Phys. 49(1977)481

- /29/ P. Lucasson, in Proceedings of the International Conference on Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals, Gatlinburg, Tennessee 1975, p.42
- /30/ P. Jung, Phys. Rev. B 23(1981)664
- /31/ K. L. Merkle, R. S. Averbach, and R. Benedek, Phys. Rev. Lett. 38(1977)424
- /32/ H. E. Schiøtt and P. V. Thomsen, Rad. Eff. 14(1972)39
- /33/ H. Adrian, Dissertation, Erlangen 1981
- /34/ J. Bara, H. U. Hryniewicz, A. Z. Hryniewicz, M. Karapandzić, and T. Matlak, phys. stat. sol. 17(1966)K53
- /35/ P. J. Black, Acta Cryst. 8(1955)43; 175
- /36/ R. H. Bush, C. A. Stickels, L. W. Hobbs, Scripta Met. 1(1967)75
- /37/ C. Janot and H. Gilbert, Phil. Mag. 27(1973)545
- /38/ S. Nasu, U. Gonser, Proceedings of the 5th International Conference on Mössbauer Spectroscopy, Bratislava, 1973, p.311
- /39/ S. Nasu, U. Gonser, A. Bläsius, and F. E. Fujita, J. de Phys. C2(1979)619
- /40/ R. S. Preston and R. Gerlach, Phys. Rev. B 3(1971)1519
- /41/ R. S. Preston, S. Nasu, and U. Gonser, J. de Phys. C2(1979)564
- /42/ C. A. Stickels and R. H. Bush, Met. Trans. 2(1971)2031
- /43/ F. R. Fickett, Cryogenics 11(1971)349
- /44/ F. Dworschak, W. Sassin, J. Wick und J. Wurm, KFA-Report, Jül-575-FN (1969)

- /45/ W. Mansel, persönliche Mitteilung, Garching 1983
- /46/ H. Spiering, persönliche Mitteilung, Mainz 1983
- /47/ M. Nakagawa, K. Böning, P. Rosner, and G. Vogl,
Phys. Rev. B 16(1977)5285
- /48/ H. J. Wollenberger, in Vacancies and Interstitials in
Metals, North-Holland, Amsterdam 1970, pp. 215-253
- /49/ D. E. Becker, F. Dworschak, and H. Wollenberger,
phys. stat. sol. (b) 54(1972)455
- /50/ H. Wegener, Der Mössbauereffekt und seine Anwendung in
Physik und Chemie, Bibliographisches Institut,
Mannheim 1965
- /51/ W. Mansel, persönliche Mitteilung, Garching 1983
- /52/ G. Gilat and R. M. Nicklow, Phys. Rev. 143(1966)487
- /53/ A. Scholz and C. Lehmann, Phys. Rev. B 6(1972)813
- /54/ P. H. Dederichs, C. Lehmann, and A. Scholz,
Phys. Rev. Lett. 31(1973)1130
- /55/ J. B. Gibson, A. N. Goland, M. Milgram, and G. H.
Vineyard, Phys. Rev. 120(1960)1229
- /56/ K. Böning, W. Mauer, K. Pfändner, and P. Rosner,
Rad. Eff. 29(1976)177
- /57/ R. S. Averback, K. L. Merkle, and L. J. Thompson,
Rad. Eff. 51(1980)91
- /58/ U. Theis and H. Wollenberger,
J. Nucl. Mater. 88(1980)121
- /59/ H. Wagner, F. Dworschak, and W. Schilling,
Phys. Rev. B 2(1970)3856
- /60/ F. Maury, Rad. Eff. 70(1983)237

- /61/ H. Wollenberger, C. Abromeit, and F. Dworschak,
Rad. Eff. 70(1983)255
- /62/ A. Bartels, F. Dworschak, and W. Petry,
Rad. Eff. 59(1982)191
- /63/ H. M. Simpson and R. L. Chaplin,
Phys. Rev. 178(1969)1166
- /64/ D. Grasse, Dissertation,
Technische Universität München 1980
- /65/ A. Bartels, J. Bewerunge, F. Dworschak and
H. Wollenberger, Rad. Eff. Lett. 67(1982)135

Am Zustandekommen dieser Arbeit in der vorliegenden Form waren viele - Kollegen, Mitarbeiter, Vorgesetzte - beteiligt.

Prof. Dr. H. Wegener regte die Arbeit an und stellte die zu ihrer Durchführung nötigen Mittel bereit.

Herrn Dr. D. Seyboth und Frau I. Weitzenfelder war bei den Bestrahlungen keine Nachtschicht zuviel.

Die Mitglieder der Mössbauergruppe in der Glückstr.10, Prof. Dr. G. Ritter, Dr. U. Volland (jetzt in der Hochenergiephysik-Gruppe), Dipl.-Phys. Reiner Doerfler, Dipl.-Phys. J. Waigel, Dipl.-Phys. W. Gruber, Dipl.-Phys. O. Leupold und Dr. D. L. Nagy waren jederzeit zu tatkräftiger Mithilfe bereit.

Dr. K. Wimmer engagierte sich bei der experimentellen Aufbauarbeit. Sein weitsichtig konzipiertes "WK"-Programmsystem erschloß mir viele wertvolle Möglichkeiten bei der Auswertung der anfallenden Meßdaten.

Meinen Kollegen von der Supraleitungsgruppe, vor allem Dr. H. Adrian und Dipl.-Phys. W. Schmidt, verdanke ich viele Diskussionen; bei Tieftemperaturproblemen halfen sie kompetent mit vielen Ratschlägen. Dipl.-Phys. C. Nölscher führte die Rückstreuungsmessungen durch und wertete sie aus.

Die Angehörigen des technischen Personals am Erlanger Tandembeschleuniger lösten alle Probleme im Zusammenhang mit den Bestrahlungen, der Flüssighelium-Versorgung und den Werkstattarbeiten.

Dipl.-Phys. H. Barfuß, Dipl.-Phys. H. Föttinger und Dr. J. Trebst ermöglichten mir die rechnergestützte Reinschrift dieser Arbeit. Frau G. Chucholowius fertigte einen Teil der Zeichnungen dazu an.

Ihnen allen möchte ich herzlich danken.

Ein besonderes Dankeschön möchte ich Herrn Dr. W. Mansel vom Physik-Department E21 der Technischen Universität München sagen. Er trug auf vielerlei Weise zum Gelingen dieser Arbeit bei: durch entscheidende Hilfe bei der Herstellung von Al^{57}Co -Proben, durch Überlassung eines Pd^{57}Fe -Absorbers mit guter Linienbreite und durch die viele Zeit, die er für klärende und weiterführende Diskussionen übrig hatte. Er war es, der der Betreuung dieser Arbeit das i-Tüpfelchen aufsetzte.

Lebenslauf

Norbert Zeman

Geboren am	15. 1.1952
in	Nürnberg
Eltern	Wilhelm Zeman, Dipl.-Ing. Anna Zeman geb. Schöttner, Lehrerin
Familienstand	Verheiratet seit 31. 5.1979 mit Ruthild Zeman geb. Wölfel
Kinder	Christiane, geboren am 25. 3.1982 Angelika, geboren am 2. 8.1983
Schulbildung	1958-1962 Volksschule, Nürnberg 1962-1970 Melanchthon-Gymnasium Nürnberg Reifeprüfung im Juni 1970
Studium	Studium der Physik an der Universität Erlangen-Nürnberg von November 1970 bis März 1977 Diplomarbeit am Institut von Prof. Dr. H. Wegener
Prüfungen	Diplom-Vorprüfung im Januar 1973 Diplom-Hauptprüfung im Februar 1977
Stellung	Seit April 1977 wissenschaftlicher Mitar- beiter im Physikalischen Institut der Universität Erlangen-Nürnberg

